



**Analyse des mesures de l'expérience satellitaire SAGE  
III: algorithme d'inversion et validation des résultats.  
Comparaison des produits des instruments de la mission  
spatiale ACE avec des mesures corrélatives à distance et  
in situ.**

Cédric Tétard

► **To cite this version:**

Cédric Tétard. Analyse des mesures de l'expérience satellitaire SAGE III: algorithme d'inversion et validation des résultats. Comparaison des produits des instruments de la mission spatiale ACE avec des mesures corrélatives à distance et in situ.. Océan, Atmosphère. Université des Sciences et Technologie de Lille - Lille I, 2003. Français. NNT: . tel-00289578

**HAL Id: tel-00289578**

**<https://theses.hal.science/tel-00289578>**

Submitted on 22 Jun 2008

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° d'ordre : 4179

**Université des Sciences et Technologies de Lille**

# **THÈSE**

pour obtenir le grade de :

**DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE LILLE I**

Spécialité :

**LASERS, MOLÉCULES, RAYONNEMENT ATMOSPHERIQUE**

soutenue le 23 mai 2008 par

**Cédric Tétard**

Titre :

**Analyse des mesures de l'expérience satellitaire SAGE III :  
algorithme d'inversion et validation des résultats.**

**Comparaison des produits des instruments de la mission  
spatiale ACE avec des mesures corrélatives à distance et in situ.**

## **JURY**

Mme Nathalie Brun-Huret	Maître de conférences, Université d'Orléans	Rapporteur
M. Didier Fussen	Directeur de recherche, IASB, Belgique	Rapporteur
M. Peter F. Bernath	Professeur, Université de York, UK	Examineur
M. Georges Durr	Professeur, Université de Reims	Examineur
Mme Jacqueline Lenoble	Professeur émérite, Université de Lille 1	Examinatrice
Mme Nicole Papineau	Ingénieur CNES	Examinatrice
Mme Colette Brogniez	Professeur, Université de Lille 1	Directrice de thèse

**Laboratoire d'Optique Atmosphérique**  
U.F.R de Physique Fondamentale  
Université des Sciences et Technologies de Lille  
59655 Villeneuve d'Ascq  
France



*A Laurence et Thibaut,*

*A mes parents*





# Remerciements

Mes premiers remerciements sont évidemment adressés à ma directrice de thèse Colette Brogniez. Ses nombreuses compétences, ses précieux conseils et sa disponibilité m'ont permis d'effectuer mes travaux de thèse dans les meilleures conditions. Qu'elle trouve ici l'expression de ma sincère gratitude.

Je remercie également les directeurs successifs du Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Didier Tanré et Frédéric Parol pour leur accueil.

Je suis reconnaissant envers Nathalie Brun-Huret et Didier Fussen de bien avoir voulu être les rapporteurs de mon travail. Je remercie également Jacqueline Lenoble, Nicole Papineau, Georges Durry et Peter F. Bernath d'avoir accepté de l'examiner.

Je tiens à remercier ici tout ceux qui m'ont un jour ou l'autre aidé dans mon travail. Je pense notamment à Christine Deroo, Louis Gonzalès, Romain de Filippi, Fabrice Ducos et Philippe François pour l'informatique. Benoît Gérard, Jean-Luc Deuzé et Claudine Vanbaucé pour POLDER. Gail Anderson et Eric Shettle pour MODTRAN. Randy Moore, Larry Thomason et Mickael Pitts pour SAGE III. Karl Hoppel pour POAM III. Kaley Walker, Eric Dupuy et Chris McLinden pour l'analyse des données de ACE. L'équipe du LPCE pour m'avoir permis de travailler sur les données de SPIRALE et pour leur accueil dans leur laboratoire : Valéry Catoire, Nathalie Brun-Huret, Florent Coquelet, Jean-Baptiste Renard et Gwenaél Berthet. Merci aussi à Bernard Bonnel pour sa sympathie et son aide dans différents domaines et à mes collègues de thèse Virginie, Benjamin et Sébastien.

Un grand merci également à l'équipe enseignante et administrative de l'IUT de chimie qui m'a accueilli dans le cadre de mon monitorat : Sylvie, Monique, Ronan, Yves, Corinne.

Un énorme merci à mes parents. Vous m'avez toujours soutenu et fait confiance. Sans vous, je n'aurais pu faire tant d'études et mener à bien cette thèse. Et merci aussi à mes deux frères, Da et No. No pour nous avoir accueilli à plusieurs reprises pour quelques semaines de vacances dans sa Bretagne d'adoption. Et Da et sa femme Alex pour m'avoir fait l'immense bonheur d'être le parrain de leur petite Tess.

Enfin, merci à toi Laurence pour tes encouragements, ton écoute, pour m'avoir supporté, pour tout ce que tu es et ce qu'on a construit pendant ces années là, et pour ce qui vient d'éclore de si beau : notre petit Thibaut.

## Résumé

Le dernier rapport du GIEC (2007) souligne que la compréhension du changement climatique en cours est encore incomplète. Le rôle de la stratosphère est notamment mal connu. C'est pourquoi il est important d'étudier sa composition et les processus physico-chimiques s'y déroulant. Les mesures d'occultation solaire telles celles de l'instrument satellitaire SAGE III et les mesures in situ sont particulièrement bien adaptées à l'étude de la stratosphère. J'ai étudié dans cette thèse la cohérence entre les mesures existantes. Mon travail a consisté à inverser les transmissions atmosphériques de SAGE III pour obtenir les profils verticaux des concentrations en ozone et en dioxyde d'azote ainsi que des coefficients d'extinction des aérosols dans neuf canaux entre 385 et 1545 nm. Dans les canaux situés autour de 450 nm, un lissage vertical a été effectué sur les transmissions tangentes pour pallier un défaut de neutralité spectrale de l'atténuateur. Dans le canal à 1545 nm, la prise en compte de l'absorption du CO<sub>2</sub> a été effectuée avec le modèle MODTRAN 5. Les incertitudes ont été évaluées par une méthode de Monte Carlo. Nous avons alors validé nos produits à l'aide des produits SAGE III officiels (NASA), ceux d'un troisième algorithme développé par une équipe de Saint Petersburg et à l'aide de mesures coïncidentes des instruments SAGE II et POAM III. Ces comparaisons montrent que les produits LOA sont de bonne qualité. Cependant, une étude effectuée à l'aide des mesures in situ de l'instrument sous ballon SPIRALE aux abords du vortex polaire a montré un bon accord pour O<sub>3</sub> et un désaccord pour NO<sub>2</sub>. Ce désaccord montre que la méthode d'occultation solaire pour la mesure d'espèces réactives (tel NO<sub>2</sub>) dans des conditions dynamiques complexes n'est pas bien adaptée. De plus, les variations diurnes de NO<sub>2</sub> rendent les comparaisons directes entre mesures à distance et in situ difficiles.

Une étude spécifique sur les aérosols des feux de forêt de l'ouest du Canada (août 2003) a été menée avec les produits SAGE III officiels. Des intrusions d'aérosols issus des feux de forêt dans la basse stratosphère par pyroconvection sont suspectées d'être à l'origine des pics d'extinction observés par SAGE III. Nous avons déduit des mesures SAGE III les propriétés microphysiques de ces aérosols et montré que ces coefficients d'extinction anormalement élevés étaient dus à une augmentation du nombre de particules dans la basse stratosphère. Cependant, la nature chimique de ces aérosols n'a pu être déterminée car les mesures d'extinction ne sont pas assez sensibles à l'indice de réfraction.

Depuis la fin des missions SAGE II, SAGE III et POAM III, les instruments satellitaires de la mission ACE-SCISAT sont les seuls instruments d'occultation solaire (hormis SOFIE) fournissant des informations sur la stratosphère. Nous nous sommes ainsi intéressés à la validation de leurs mesures à l'aide des données de SAGE II, SAGE III et SPIRALE. Ce travail s'inscrit dans le cadre de la campagne de validation internationale. Nous avons montré que les coefficients d'extinction des aérosols déduits des mesures de IMAGER sont en désaccord avec ceux de SAGE II et SAGE III et que les rapports de mélange en ozone et en dioxyde d'azote de FTS et de MAESTRO sont en bon accord avec les produits SAGE III. Cependant, nous obtenons également un désaccord concernant NO<sub>2</sub> en comparaison avec SPIRALE bien que les autres espèces (CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, HNO<sub>3</sub>, O<sub>3</sub>, HCl) déduites de FTS ainsi que l'ozone MAESTRO sont en bon accord avec les données SPIRALE.

**Mots Clés :** SAGE III, inversion, aérosol, ozone, dioxyde d'azote, validation, SPIRALE, ACE.

## Abstract

One of the conclusions of the last IPCC report (2007) is that the comprehension of climate change is still incomplete. In particular, the role of the stratosphere is not well known; that is why it is important to study its composition and the physical and chemical processes in the stratosphere. Solar occultation measurements (like SAGE III) and in situ measurements are particularly appropriate for these studies. In this thesis, we have studied the consistency of the existing measurements.

My work consists of the inversion of SAGE III transmissions in order to obtain vertical profiles of ozone and nitrogen dioxide concentrations and of aerosol extinction coefficients in nine channels between 385 and 1545 nm. In the channels around 450 nm, a vertical smoothing of the tangent transmissions is required to compensate for the problem of spectral neutrality of the attenuator. In the 1545 nm channel, CO<sub>2</sub> absorption is computed using MODTRAN 5. The uncertainties are evaluated using a Monte Carlo method. SAGE III products obtained by our algorithm are compared to official products (NASA), to products from another algorithm developed in St. Petersburg and to coincident measurements from the SAGE II and POAM III sensors. Globally, these comparisons show that the SAGE III products from my LOA algorithm are of good quality. However, a comparison performed with data from the balloon-borne instrument SPIRALE (in situ measurements) on the edge of the polar vortex shows a good agreement between ozone and a disagreement for NO<sub>2</sub>. This disagreement shows that in complex dynamical situations, the solar occultation method for reactive species (such as NO<sub>2</sub>) is not well suited. Furthermore, diurnal variations of NO<sub>2</sub> complicate the comparisons between remote sensing measurements and in situ ones.

A specific study concerning aerosol resulting from forest fires in the western Canada (August 2003) has been done using official SAGE III data. Intrusions of biomass burning aerosols in the lower stratosphere by pyroconvection could be the reason for the increase in aerosol extinction coefficients in the lower stratosphere observed in SAGE III events. We have deduced the microphysical properties of these aerosols from the SAGE III measurements and showed that the increase in the aerosol extinction coefficient was caused by an increase in the number of particles in the lower stratosphere. Nevertheless, the chemical composition of these aerosols could not be deduced from the SAGE III measurements because extinction measurements are not sensitive enough to the refraction index.

Since the end of the SAGE II, SAGE III and POAM III missions, the ACE-SCISAT instruments along with the SOFIE instrument are the only solar occultation instruments providing informations on the stratosphere. Thus, we have studied the consistency between ACE data and SAGE II, SAGE III and SPIRALE data. This work is carried out within the framework of the international validation campaign. We have shown that aerosol extinction coefficients retrieved using IMAGER data are in disagreement with those retrieved using SAGE II and SAGE III and that the ozone and NO<sub>2</sub> volume mixing ratio from FTS and MAESTRO are in a good agreement with SAGE III data. However, we find also discrepancies between NO<sub>2</sub> retrieved by ACE and that retrieved by SPIRALE although the other species retrieved using FTS (CH<sub>4</sub>, N<sub>2</sub>O, HNO<sub>3</sub>, O<sub>3</sub>, HCl) and MAESTRO (O<sub>3</sub>) are in a good agreement with SPIRALE data.

**Keywords :** SAGE III, inversion, aerosol, ozone, nitrogen dioxide, validation, SPIRALE, ACE.



# Table des matières

<b>Acronymes</b>	<b>11</b>
<b>1 Introduction</b>	<b>13</b>
1.1 Contexte . . . . .	13
1.1.1 Le problème climatique . . . . .	13
1.1.2 Les accords internationaux . . . . .	15
1.2 Présentation de la thèse . . . . .	17
<b>2 Cadre de la thèse</b>	<b>19</b>
2.1 Composition chimique de l'atmosphère actuelle . . . . .	19
2.1.1 Les espèces gazeuses dans l'atmosphère . . . . .	19
2.1.2 Les aérosols . . . . .	21
2.1.2.1 Origines . . . . .	21
2.1.2.2 Les aérosols stratosphériques . . . . .	23
2.1.2.3 Les nuages stratosphériques polaires . . . . .	24
2.1.2.4 Distributions en taille . . . . .	26
2.1.2.5 Effets climatiques des aérosols stratosphériques . . . . .	27
2.1.2.6 Effets chimiques des aérosols stratosphériques . . . . .	28
2.2 La stratosphère . . . . .	28
2.2.1 La tropopause . . . . .	28
2.2.1.1 Définition thermique . . . . .	29
2.2.1.2 Définition dynamique . . . . .	29
2.2.1.3 Définition chimique . . . . .	30
2.2.2 La dynamique stratosphérique . . . . .	31
2.2.2.1 Circulation générale . . . . .	31
2.2.2.2 Le vortex polaire . . . . .	32
2.2.3 Eléments de chimie de la stratosphère . . . . .	32
2.2.3.1 Les propriétés de l'ozone . . . . .	32
2.2.3.2 Le cycle de Chapman . . . . .	33
2.2.3.3 Cycles catalytiques de destruction de l'ozone à l'échelle globale . . . . .	34
2.2.3.4 L'ozone aux pôles . . . . .	35
2.3 Le transfert du rayonnement électromagnétique . . . . .	37
2.3.1 Quelques définitions essentielles . . . . .	37
2.3.1.1 La luminance monochromatique . . . . .	37
2.3.1.2 La densité de flux . . . . .	38
2.3.2 L'équation de transfert . . . . .	38

2.3.2.1	Cas général . . . . .	38
2.3.2.2	Extinction seule : loi de Beer-Lambert . . . . .	39
2.3.3	La diffusion . . . . .	40
2.3.3.1	La diffusion moléculaire . . . . .	40
2.3.3.2	La diffusion des particules sphériques . . . . .	41
2.3.4	L'absorption gazeuse . . . . .	42
2.3.4.1	Remarques préliminaires . . . . .	42
2.3.4.2	Les raies d'absorption . . . . .	43
2.3.4.3	Modèles de bande pour un trajet homogène . . . . .	45
2.3.4.4	Modèles de bande pour un trajet inhomogène . . . . .	46
2.3.4.5	Les fonctions k-corrélées . . . . .	47
2.3.4.6	L'ozone . . . . .	48
2.3.4.7	Le dioxyde d'azote . . . . .	50
2.3.4.8	Le dioxyde de carbone . . . . .	52
2.3.4.9	La vapeur d'eau . . . . .	53
<b>3</b>	<b>Les expériences satellitaires d'occultation solaire</b>	<b>55</b>
3.1	La méthode d'occultation solaire . . . . .	55
3.2	Les instruments d'occultation solaire . . . . .	57
3.2.1	Les instruments SAGE . . . . .	57
3.2.2	Les instruments POAM . . . . .	61
3.2.3	ACE-SCISAT . . . . .	62
3.2.3.1	ACE - FTS . . . . .	62
3.2.3.2	ACE - MAESTRO . . . . .	63
3.2.3.3	ACE - Imager . . . . .	64
3.2.4	Les autres instruments d'occultation solaire . . . . .	64
3.3	Conclusions . . . . .	65
<b>4</b>	<b>Algorithme d'inversion de SAGE III</b>	<b>67</b>
4.1	L'algorithme d'inversion du LOA . . . . .	68
4.1.1	Description . . . . .	68
4.1.1.1	Epaisseur optique à une altitude tangente . . . . .	68
4.1.1.2	Le canal à 1545 nm . . . . .	71
4.1.1.3	L'inversion spatiale . . . . .	77
4.1.1.4	L'inversion spectrale . . . . .	78
4.1.1.5	Estimation des incertitudes . . . . .	82
4.1.2	Etude de sensibilité de l'algorithme . . . . .	83
4.1.2.1	Sensibilité spectroscopique . . . . .	83
4.1.2.2	Coefficient de diffusion moléculaire . . . . .	87
4.2	Validation avec les produits du LaRC . . . . .	88
4.2.1	Description de l'algorithme du LaRC . . . . .	88
4.2.2	Comparaisons . . . . .	89
4.2.2.1	Profils individuels . . . . .	89
4.2.2.2	Etude statistique . . . . .	103
4.2.3	Conclusions . . . . .	111
4.3	Validation avec les produits de l'algorithme du SPbSU . . . . .	111
4.3.1	Description de l'algorithme du SPbSU . . . . .	111

4.3.2	Comparaisons . . . . .	112
4.3.2.1	Profils individuels . . . . .	112
4.3.2.2	Etude statistique . . . . .	115
4.3.3	Conclusions . . . . .	118
4.4	Validation avec les produits de POAM III . . . . .	118
4.4.1	Description de l'algorithme de POAM III . . . . .	118
4.4.2	Comparaisons . . . . .	118
4.4.2.1	Profils individuels . . . . .	120
4.4.2.2	Etude statistique . . . . .	123
4.4.3	Conclusions . . . . .	125
4.5	Validation avec les produits de SAGE II . . . . .	127
4.5.1	Description de l'algorithme d'inversion de SAGE II . . . . .	127
4.5.2	Comparaisons . . . . .	127
4.5.2.1	Profils individuels . . . . .	128
4.5.2.2	Etude statistique . . . . .	131
4.5.3	Conclusions . . . . .	134
4.6	Validation avec les produits de SPIRALE . . . . .	134
4.6.1	Description de l'instrument SPIRALE . . . . .	134
4.6.2	Spécificité du vol de janvier 2003 . . . . .	135
4.6.3	Comparaisons . . . . .	137
4.7	Conclusions . . . . .	142
<b>5</b>	<b>Les aérosols stratosphériques issus de feux de forêt</b>	<b>145</b>
5.1	Géographie, météorologie et incendies . . . . .	146
5.1.1	Géographie . . . . .	146
5.1.2	Conditions météorologiques de l'été 2003 au Canada . . . . .	147
5.1.3	Les incendies de forêt . . . . .	147
5.2	Observations satellitaires de feux de forêt . . . . .	148
5.2.1	L'instrument MODIS . . . . .	148
5.2.2	L'instrument TOMS . . . . .	149
5.2.3	L'instrument SAGE III . . . . .	150
5.2.4	L'instrument POLDER 2 . . . . .	154
5.3	Propriétés microphysiques des aérosols de feux de forêt . . . . .	154
5.3.1	Méthode . . . . .	156
5.3.2	Résultats . . . . .	157
5.4	Conclusions . . . . .	159
<b>6</b>	<b>Validation des mesures des instruments de ACE-SCISAT</b>	<b>161</b>
6.1	ACE-FTS . . . . .	161
6.1.1	Introduction . . . . .	161
6.1.2	SPIRALE . . . . .	162
6.1.2.1	Préambule . . . . .	162
6.1.2.2	O <sub>3</sub> . . . . .	165
6.1.2.3	NO <sub>2</sub> . . . . .	166
6.1.2.4	N <sub>2</sub> O . . . . .	167
6.1.2.5	HNO <sub>3</sub> . . . . .	168
6.1.2.6	HCl . . . . .	169



6.1.2.7	CH <sub>4</sub> . . . . .	170
6.1.3	SAGE III (LOA) . . . . .	171
6.1.3.1	O <sub>3</sub> . . . . .	172
6.1.3.2	NO <sub>2</sub> . . . . .	173
6.2	ACE-MAESTRO . . . . .	175
6.2.1	Introduction . . . . .	175
6.2.2	SPIRALE . . . . .	176
6.2.2.1	O <sub>3</sub> . . . . .	176
6.2.2.2	NO <sub>2</sub> . . . . .	177
6.2.3	SAGE III (LOA) . . . . .	178
6.2.3.1	O <sub>3</sub> . . . . .	178
6.2.3.2	NO <sub>2</sub> . . . . .	180
6.3	ACE-Imager . . . . .	181
6.3.1	Introduction . . . . .	181
6.3.2	SAGE II . . . . .	182
6.3.3	SAGE III (LaRC) . . . . .	184
6.3.4	Interprétations . . . . .	184
6.4	Conclusions . . . . .	186
<b>Conclusion Générale</b>		<b>189</b>
<b>Annexe A : Publications</b>		<b>193</b>
<b>Annexe B : Restitution des propriétés microphysiques des aérosols</b>		<b>220</b>

# Acronymes

ACE	: Atmospheric Chemistry Experiment
ASC	: Agence Spatiale Canadienne
ATMOS	: Atmospheric Trace MOlecule Spectroscopy
CALIOP	: Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization
CCD	: Charged Couple Device
CFC	: ChloroFluoroCarbone
CKD	: Correlated-K Distribution
DMS	: DiMethylSulfure
EGA	: Emissivity Growth Approximation
ENVISAT	: ENVIronmental SATellite
FTS	: Fourier Transform Spectrometer
GIEC	: Groupe Intergouvernemental d'expert sur l'Evolution du Climat
GOME	: Global Ozone Monitoring Experiment
HALOE	: HALogene Occultation Experiment
HITRAN	: HIGH resolution TRANsmision molecular absorption database
HYSPLIT	: Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory
IFOV	: Instantaneous Field Of View
IPCC	: Intergovernmental Panel on Climate Change
LaRC	: Langley Research Center
LBL	: Line By Line
LND	: Log-Normal Distribution
LOSU	: Level Of Scientific Understanding
LPCE	: Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement
LPMA	: Limb Profile Monitor of the Atmosphere
MAESTRO	: Measurement of Aerosol Extinction in the Stratosphere and the Troposphere Retrieved by Occultation
MIMOSA	: Modélisation Isentrope du transport Méso-échelle de l'Ozone Stratosphérique par Advection
MIPLASMO	: Microphysical and Photochemical Lagrangian Stratospheric Model of Ozone
MODIS	: MODerate resolution Imaging Spectroradiometer
MODTRAN	: MODerate resolution TRANsmittance
NASA	: National Aeronautics and Space Administration
NAT	: Nitric Acid Trihydrate
NCEP	: National Centers for Environmental Prediction
NRL	: Naval Research Laboratory
OMM	: Organisation Météorologique Mondiale
ONERA	: Office National d'Etudes et Recherches Aérospatiales

---

ppbv	: partie par milliard en volume ( $10^{-9}$ )
PMC	: Polar Mesospheric Cloud
PNUE	: Programme des Nations Unies pour l'Environnement
POAM	: Polar Ozone and Aerosol Measurement
POLDER	: POLarization and Directionality of the Earth's Reflectances
PSC	: Polar Stratospheric Cloud
PV	: Potential Vorticity
PVU	: Potential Vorticity Unit
REPROBUS	: REactive Processes Ruling the Ozone BUdget in the Stratosphere
RMS	: Root Mean Square
SAGE	: Stratospheric Aerosol and Gas Experiment
SAM	: Stratospheric Aerosol Measurement
SAOZ	: Système d'Analyse par Observation Zénithale
SBUV	: Solar Backscatter UltraViolet
SCIAMACHY	: SCanning Imaging Absorption spectroMeter for Atmospheric CHartogra- phY
SPbSU	: Saint Petersburg State University
SPIRALE	: SPectroscopie Infra-Rouge par Absorption de Lasers Embarqués
SPOT	: Satellite Pour l'Observation de la Terre
STAC	: Stratospheric and Tropospheric Aerosol Counter
STS	: Supercooled Ternary Solution
TOMS	: Total Ozone Mapping Spectrometer
UKMO	: United Kingdom Met Office
WCB	: Warm Conveyor Belt

# Chapitre 1

## Introduction

### 1.1 Contexte

#### 1.1.1 Le problème climatique

Depuis une vingtaine d'années, le problème du réchauffement climatique est devenu un sujet d'une importance primordiale. En l'espace de quelques années, les mondes politiques et médiatiques se sont emparés de ce problème. Il n'y a plus un journal télévisé sans reportage concernant le changement climatique. Dès qu'une catastrophe environnementale naturelle survient, le coupable est très rapidement identifié dans l'esprit du grand public : le réchauffement climatique. Les raisons de cet intérêt populaire grandissant résident dans les grandes découvertes de ces dernières années.

Les premières études sur l'atmosphère commencèrent bien avant cette engouement populaire. L'un des premiers savants à proposer une étude scientifique de l'atmosphère fut le physicien Joseph Fourier. En 1824, il publie un essai scientifique [Fourier, 1824] dans lequel il propose une théorie selon laquelle les gaz de l'atmosphère terrestre augmentent la température à sa surface. Cette théorie constitue une première ébauche de l'effet de serre. Cet effet est la propriété qu'ont certaines molécules à piéger et à réémettre le rayonnement infrarouge émis par la surface de la Terre y assurant ainsi une température telle que la vie a pu s'y développer. Sans les gaz à effet de serre, la température d'équilibre à la surface de la Terre ne serait que de  $-18$  à  $-15^{\circ}\text{C}$  [Mégie, 1992, Berger, 1996].

Quelques années plus tard, en 1896, le chimiste suédois Svante August Arrhénius remarqua que l'augmentation de la combustion de carburants fossiles ferait croître la quantité de dioxyde de carbone atmosphérique et renforcerait ainsi l'effet de serre. Il calcula aussi que si la quantité de  $\text{CO}_2$  atmosphérique doublait, il en résulterait une augmentation moyenne de la température de surface de  $5$  à  $6^{\circ}\text{C}$  [Arrhénius, 1896].

Depuis 1958, l'américain Charles David Keeling effectue des mesures systématiques de la concentration de  $\text{CO}_2$  dans l'atmosphère depuis le site de Mauna Loa (Hawaii) et constate une augmentation de la concentration de ce gaz. Ces mesures confirment la croissance de la concentration atmosphérique de ce gaz (figure 1.1), [Keeling et al., 2005]. On constate également sur cette figure les variations saisonnières de la concentration en  $\text{CO}_2$ . Ces variations sont dues aux activités photosynthétiques (principalement au printemps et en été, puits de  $\text{CO}_2$ ) et photorespiratoires (dominantes en automne et hiver, source de  $\text{CO}_2$ ) des végétaux. La concentration moyenne annuelle de  $\text{CO}_2$  en 1958 était de

315 ppm, 330 ppm en 1974 et 380 ppm aujourd'hui alors que cette même concentration n'a jamais dépassé 290 ppm avant 1900. Rien ne semble indiquer pour le moment une tendance à la baisse de cette concentration. D'autres gaz à effet de serre ( $\text{CH}_4$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  notamment) ont vu leurs concentrations augmenter fortement depuis le début de l'ère industrielle (vers 1850). Cette augmentation des concentrations atmosphériques en gaz à effet de serre est suspectée d'être la responsable de l'augmentation accélérée de la température moyenne de surface (figure 1.2).

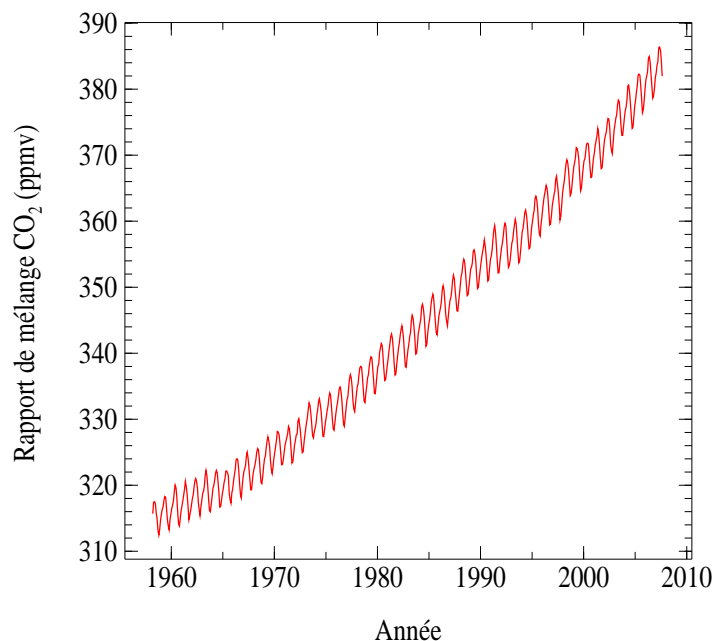


FIG. 1.1 – Croissance depuis 1958 de la teneur atmosphérique en  $\text{CO}_2$ , d'après Keeling et al. [2005]. Après 2005, les valeurs tracées proviennent des données disponibles sur le site internet du Scripps Institution of Oceanography<sup>2</sup>.

Une autre découverte majeure ayant engendré cet engouement populaire pour notre environnement est celle du fameux "trou" dans la couche d'ozone par le britannique Joseph Farman en 1985 [Farman et al., 1985]. Un appauvrissement de la concentration en  $\text{O}_3$  apparaît chaque printemps dans la couche d'ozone stratosphérique située au-dessus de l'Antarctique. L'équipe de Farman constatèrent une accentuation de cet appauvrissement. A la fin des années 80, la communauté scientifique se mit d'accord sur l'origine de cette évolution : les chlorofluorocarbures (CFC). Ces gaz, dont l'origine est industrielle, ont une très longue durée de vie et atteignent la stratosphère où ils sont photodissociés et participent aux cycles de destruction catalytique de l'ozone au-dessus de l'Antarctique mais également, dans une moindre mesure, au-dessus de l'Arctique. C'est l'une des premières fois dans l'histoire qu'un changement de l'environnement atmosphérique est indiscutablement d'origine anthropique.

Ces découvertes (entre autres) entraînèrent rapidement la réaction du public et par là même, le monde politique s'empara du sujet.

<sup>2</sup><http://scrippsco2.ucsd.edu/>

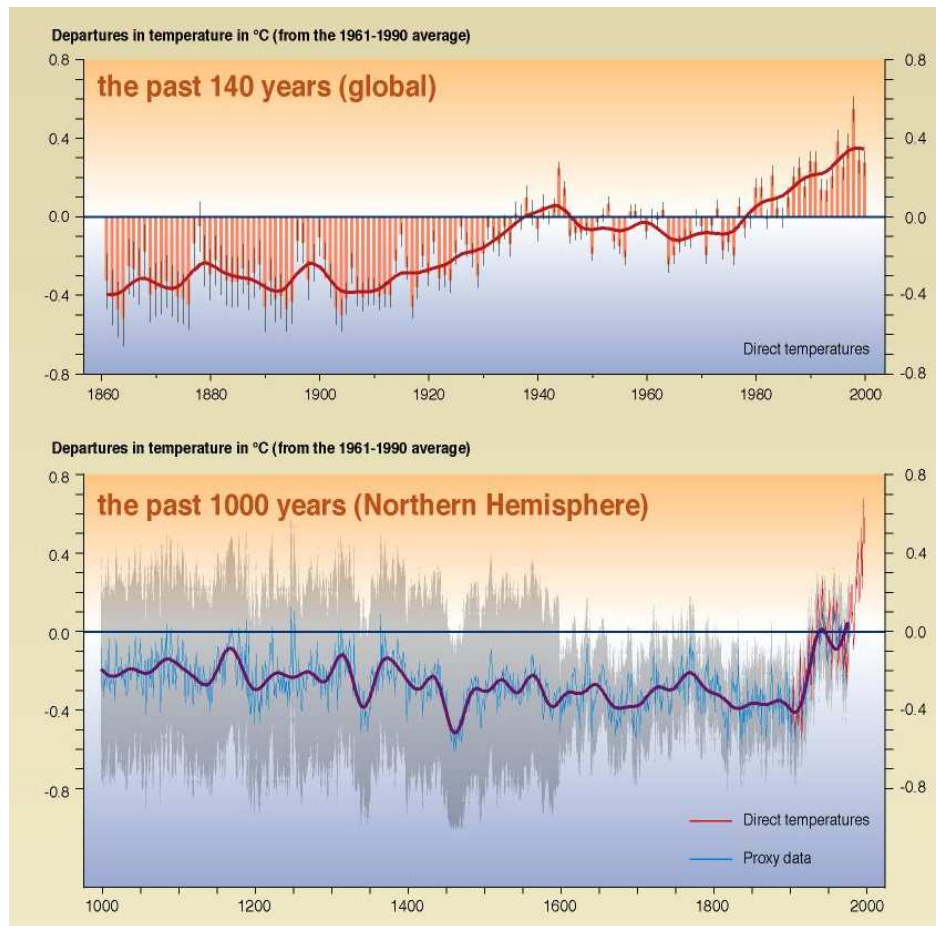


FIG. 1.2 – Evolution de la différence entre la température de surface de la Terre par rapport à la moyenne des températures entre 1961 et 1990, de 1860 à 2000 pour le globe (figure du haut) et de 1000 à 2000 pour l’hémisphère nord (figure du bas). D’après [GIEC, 2007].

### 1.1.2 Les accords internationaux

Après la parution des premiers résultats de Keeling, l’Organisation Météorologique Mondiale (OMM) organisa la première conférence mondiale sur le climat à Genève en 1979. La question de l’influence anthropique sur l’augmentation de l’effet de serre fut abordée ainsi que celle des conséquences d’un tel réchauffement sur l’agriculture, la santé et autres domaines. Les politiques à adopter pour minimiser les risques furent également débattues.

Suite à la découverte de la diminution de la couche d’ozone stratosphérique et de l’origine anthropique de ce problème, la convention de Vienne (1985) pour la protection de la couche d’ozone fut signée. Elle reconnaît la nécessité d’accroître la coopération internationale en vue de limiter l’impact des activités humaines sur la couche d’ozone. Cependant, aucune mesure de restriction des émissions de CFC ne fut adoptée. Ces mesures ne furent prises que deux années plus tard à Montréal. Le protocole de Montréal est un accord international visant à réduire puis à supprimer l’utilisation des CFC et autres substances responsables de l’appauvrissement de la couche d’ozone stratosphérique. Au-

jourd'hui, les premiers résultats de cette décision politique internationale se font ressentir : la concentration atmosphérique de certains CFC commence à plafonner voire même à diminuer. Cependant, il existe encore beaucoup de ces composés dans nos anciens systèmes réfrigérants (entre autres) qui finiront bien certainement dans l'atmosphère.

Suite à la médiatisation des problèmes environnementaux, l'inquiétude croissante du grand public et aux sonnettes d'alarmes des scientifiques, l'OMM et le PNUE (Programme des Nations Unies pour l'Environnement) mirent en place en 1991 le Groupement Intergouvernemental d'experts sur l'Evolution du Climat (GIEC et IPCC en anglais pour Intergovernmental Panel on Climate Change). Il s'agit d'une coopération internationale dont l'un des principaux objectifs est de synthétiser l'ensemble des recherches sur le climat effectuées dans les laboratoires du monde entier. Tous les cinq ou six ans, un rapport résumant ces travaux est publié à l'intention des décideurs. Le GIEC est l'interface entre le monde scientifique et le monde politique.

Le deuxième rapport du GIEC (1995) suggéra pour la première fois que le réchauffement climatique est une conséquence des activités humaines (combustion des énergies fossiles, déforestations, agriculture et élevage intensifs,...). Certains scientifiques mirent alors cette suggestion en doute et les puissants lobbies pétroliers américains les y encouragèrent. Des désaccords politiques commencent alors à apparaître entre les pays favorables à la réduction des émissions de gaz à effet de serre et ceux qui lui sont défavorables. C'est dans ce contexte que se déroula la conférence de Kyoto en décembre 1997. Elle a pour but de chiffrer les réductions des émissions de gaz à effet de serre pour 2010 par rapport aux niveaux de 1990. Nombre de divergences apparurent entre les différents pays. Un compromis fut trouvé : le protocole de Kyoto. Les pays développés s'y engagent à réduire leurs taux d'émission de gaz à effet de serre de 5.2% d'ici 2010. A ce jour, les Etats-Unis n'ont toujours pas signé ce protocole alors que la communauté européenne a revu ses ambitions à la hausse (-8% d'ici 2010).

La question de l'implication de l'homme dans l'augmentation de l'effet de serre ne fait presque plus débat aujourd'hui : à l'issue de la réunion du GIEC de janvier 2007 à Paris, il fut clairement établi que "l'essentiel du réchauffement des cinquante dernières années est **très** vraisemblablement dû à l'accroissement de l'effet de serre", [GIEC, 2007]. Les experts sont passés de "vraisemblablement" en 2001 à "très vraisemblablement" en 2007. Cependant, les gaz à effet de serre ne sont pas les seuls acteurs des modifications climatiques en cours. Les aérosols sont actuellement très étudiés en raison des larges incertitudes demeurant à propos de leurs effets sur le bilan radiatif bien que leur forçage radiatif soit globalement négatif (figure 1.3). Ce **forçage radiatif** est défini comme l'impact radiatif qui suit une augmentation des concentrations en aérosols (ou en gaz à effet de serre). Le forçage radiatif modifie le bilan radiatif de la planète entraînant alors une modification du climat : un réchauffement si le forçage est positif et un refroidissement dans le cas contraire. Le GIEC estime que le niveau de compréhension scientifique des effets climatiques des aérosols est faible. Beaucoup d'efforts sont aujourd'hui mis en oeuvre pour mieux comprendre ces effets. Les scientifiques tentent également de mieux comprendre les effets de l'ozone, tant dans la troposphère où il a un forçage radiatif positif (effet de serre) que dans la stratosphère où ses effets radiatifs sont moins bien connus. De plus, le rôle de la stratosphère sur le changement climatique est encore mal connu [Baldwin et al., 2007].

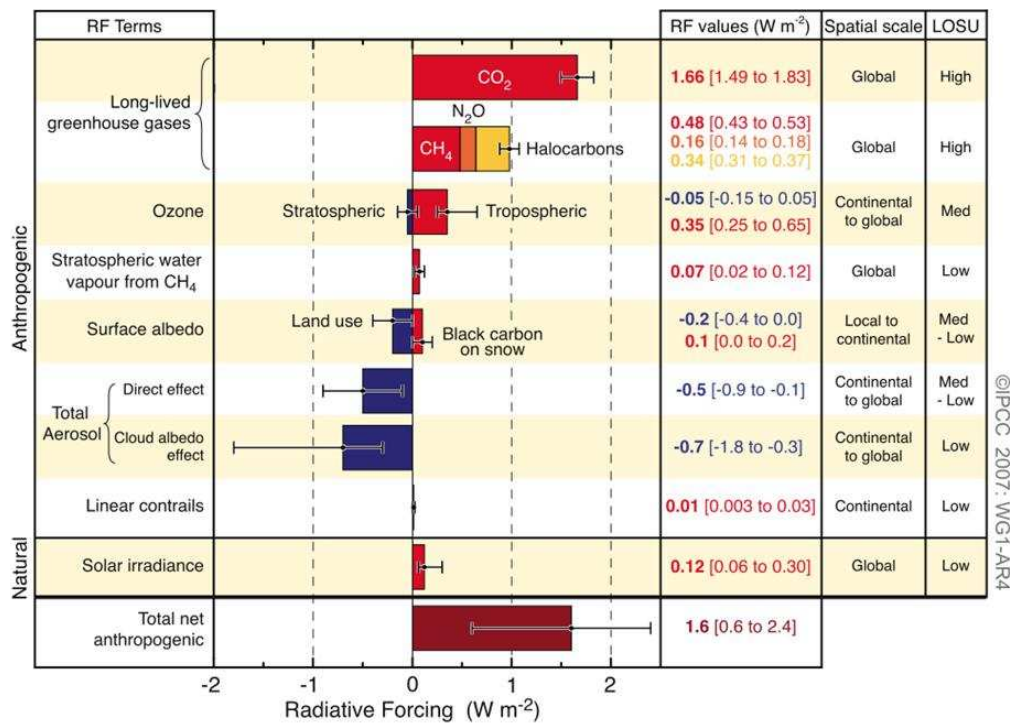


FIG. 1.3 – Moyennes annuelles des forçages radiatifs en  $\text{W.m}^{-2}$  dus à différents phénomènes. Les rectangles représentent les contributions des différents forçages radiatifs (en rouge pour un effet chauffant et en bleu, refroidissant) et les segments noirs les incertitudes sur ces estimations. La colonne LOSU représente le niveau de compréhension scientifique de chaque processus (Level Of Scientific Understanding). Figure issue de [GIEC, 2007].

## 1.2 Présentation de la thèse

Dans la première partie de cette thèse, nous introduirons les principales notions théoriques nécessaires à la compréhension des travaux effectués pendant cette thèse. Ensuite, nous présenterons dans une deuxième partie les différents instruments satellitaires d'occultation solaire dont nous avons utilisé les données. La troisième partie est consacrée à la description de l'algorithme d'inversion des transmissions de l'instrument SAGE (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment) III développé au LOA. Une étude de sensibilité à divers paramètres est incluse dans ce chapitre. Nous évaluons également dans ce chapitre la qualité des produits obtenus en les comparant aux produits SAGE III officiels, aux produits SAGE III d'un troisième algorithme ainsi qu'aux produits de mesures coïncidentes des instruments satellitaires SAGE II, POAM III et de l'instrument sous-ballon SPIRALE (mesures in situ). La quatrième partie présente une étude effectuée avec les données officielles de SAGE III. Cette étude porte sur les aérosols émis par les feux de forêts de l'ouest canadien pendant l'été 2003. Nous utiliserons pour cette partie, en plus des données de SAGE III celle d'autres capteurs tels POLDER 2 ou TOMS. La dernière partie s'inscrit dans le cadre de la campagne de validation des données des instruments de la mission ACE.





# Chapitre 2

## Cadre de la thèse

Nous développons dans cette partie les notions théoriques nécessaires à la compréhension des travaux présentés dans les chapitres qui suivent.

### 2.1 Composition chimique de l'atmosphère actuelle

L'atmosphère de la Terre s'étend de la surface à plus d'une centaine de kilomètres. Le profil vertical de température permet de diviser l'atmosphère en quatre couche : troposphère, stratosphère, mésosphère et thermosphère (voir la figure 2.1). La première couche, la troposphère, s'étend de la surface à la tropopause (couche de transition entre la troposphère et la stratosphère) située à une altitude variant de 8 à 18 km selon la latitude et la saison : elle est plus basse aux pôles qu'à l'équateur et plus élevée l'été que l'hiver. La troposphère est généralement divisée en deux régions : la couche limite et la troposphère libre. La couche limite s'étend de la surface (marine ou terrestre) jusqu'à 0.5 - 3 km d'altitude. C'est une zone où les frottements ralentissent les déplacements des parcelles d'air. La troposphère libre se situe au-dessus de cette couche, les phénomènes de frottement y sont négligeables. C'est dans cette zone que les principaux phénomènes météorologiques se déroulent. Au sein de la troposphère libre, le gradient vertical de température est négatif et à peu près constant ( $\approx -6.5 \text{ K.km}^{-1}$ ). La seconde couche est la stratosphère (cf section 2.2), elle s'étend de la tropopause (couche globalement hermétique aux échanges entre la troposphère et la stratosphère) à la stratopause ( $\approx 50 \text{ km}$ ). Le gradient vertical de température y est ici positif du fait de l'absorption du rayonnement ultra-violet solaire par la couche d'ozone stratosphérique et des réactions chimiques de formation de cette couche d'ozone. Au-dessus de la stratosphère, la mésosphère s'étend jusqu'à 85 km d'altitude puis se situe la dernière couche : la thermosphère.

#### 2.1.1 Les espèces gazeuses dans l'atmosphère

Environ 75% de la masse totale de l'atmosphère se situe dans la troposphère. Le tableau 2.1 présente la composition chimique de l'atmosphère actuelle ainsi que les temps de résidence moyen de chacun de ces constituants. Ce temps nous renseigne sur la durée de vie d'un constituant dans l'atmosphère. Les principaux constituants sont le diazote et le dioxygène ( $\approx 78$  et  $21\%$ ). La quantité de vapeur d'eau atmosphérique est variable : elle représente le troisième constituant le plus abondant de l'atmosphère. Viennent ensuite, l'argon, l'hélium et le néon, trois gaz rares chimiquement inertes. Le dioxyde de carbone

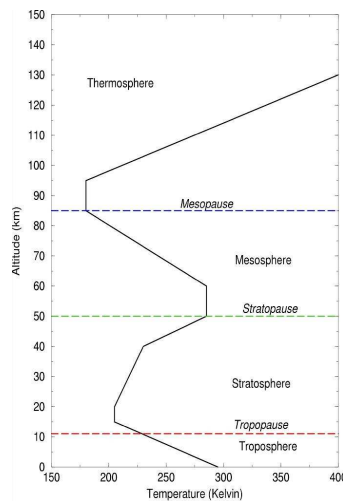


FIG. 2.1 – Description schématique de la structure verticale de l’atmosphère

Constituant	Pourcentage en volume	temps de résidence moyen
H <sub>2</sub> O, vapeur d’eau	de 0 à 5	6 à 15 jours
N <sub>2</sub> , diazote	78.084	15.10 <sup>6</sup> ans
O <sub>2</sub> , dioxygène	20.948	8.10 <sup>3</sup> ans
Ar , argon	0.934	infini*
CO <sub>2</sub> , dioxyde de carbone	0.037	15 ans
Ne, néon	1.818.10 <sup>-3</sup>	infini*
He, hélium	1.818.10 <sup>-3</sup>	infini*
CH <sub>4</sub> , méthane	≈1.7.10 <sup>-4</sup>	9 ans
N <sub>2</sub> O, protoxyde d’azote	≈3.1.10 <sup>-5</sup>	150 ans
O <sub>3</sub> , ozone	2-200.10 <sup>-6</sup>	1 à 2 mois
NO <sub>2</sub> , dioxyde d’azote	≈1.10 <sup>-7</sup>	1 jour

TAB. 2.1 – Composition chimique de l’atmosphère actuelle (D’après Delmas et al., 2005).  
\*sauf échappement de ces gaz hors de l’atmosphère.

est beaucoup plus actif, il participe comme nous l’avons vu précédemment à l’effet de serre. Les constituants minoritaires de l’atmosphère sont toutes les autres molécules recensées dans le tableau 2.1. Ils sont certes minoritaires au sein du système atmosphérique du point de vue de leur abondance mais leur contribution à divers phénomènes atmosphériques est relativement importante. Ils influent tout particulièrement le bilan radiatif terrestre par absorption ou diffusion du rayonnement. Certaines de ces molécules interviennent également dans le cycle de destruction de l’ozone stratosphérique. Ce tableau n’est pas exhaustif, d’autres espèces atomiques, moléculaires ou radicalaires peuvent subsister dans l’atmosphère et intervenir dans les processus physico-chimiques de l’atmosphère.

La figure 2.2 montre les profils verticaux des rapports de mélange des principaux éléments gazeux de l’atmosphère exprimés en ppv (partie par volume). Les espèces à longue durée de vie ont une distribution verticale homogène, c’est le cas notamment de CO<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> et N<sub>2</sub>. Pour les autres constituants, à plus courtes durées de vie, les distributions sont plus

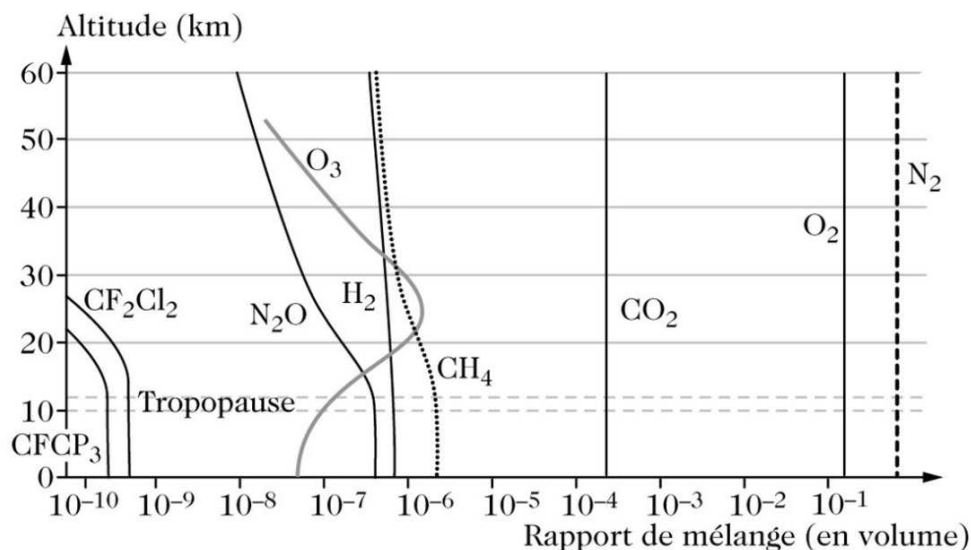


FIG. 2.2 – Distributions verticales des principales espèces gazeuses atmosphériques. (D'après Delmas et al. [2005])

inhomogènes avec de fortes concentrations dans les premiers kilomètres de l'atmosphère à proximité de leur source (la surface). L'ozone présente quant à lui un maximum de concentration dans la basse stratosphère, signe que la principale source d'ozone dans l'atmosphère est située à ces altitudes (cf section 2.2.3).

### 2.1.2 Les aérosols

Les aérosols sont des particules liquides ou solides en suspension dans l'atmosphère. Cette définition exclut les gouttelettes d'eau nuageuses et les cristaux de glace. Comme le montre la figure 1.3, il reste encore beaucoup d'incertitudes quant aux différents effets radiatifs des aérosols. Le forçage radiatif induit par leur effet direct (diffusion du rayonnement solaire) est compris entre  $-0.9$  et  $-0.1 \text{ W.m}^{-2}$ , celui induit par leurs effets sur les propriétés microphysiques des nuages (effets indirects) est compris entre  $-1.8$  et  $-0.3 \text{ W.m}^{-2}$ . Les effets climatiques des aérosols stratosphériques sont discutés plus en détail dans la section 2.1.2.5. Véritable casse-tête pour les scientifiques du monde entier, les aérosols se distinguent par de grandes variétés de tailles, de compositions chimiques et de sources d'émissions.

#### 2.1.2.1 Origines

On distingue deux catégories d'aérosols selon leurs modes de production : les aérosols primaires et les aérosols secondaires.

**Les aérosols primaires** sont produits directement à la surface de la Terre par combustion (naturelle ou anthropique), par l'action du vent sur les surfaces terrestres ou océaniques, par le volcanisme ou par les activités humaines (cimenterie...). Il s'agit notamment des poussières désertiques, des embruns marins, des aérosols de feux de biomasse... Ce sont des particules de tailles variables allant de  $0.1$  à quelques dizaines de micromètres de diamètre. Dans la troposphère, le temps de résidence moyen de ces aérosols (hormis ceux

d'origine volcanique atteignant directement la stratosphère) est de quelques semaines.

**Les aérosols secondaires** sont quant à eux issus de processus atmosphériques de conversion des composés gazeux en particules. La première étape de cette conversion est la nucléation. Il s'agit du processus selon lequel des molécules de gaz viennent s'agréger sur d'autres (nucléation homogène) ou sur une substance étrangère (nucléation hétérogène) formant ainsi un composé particulaire. Ces particules, initialement très petites ( $10^{-4}$  à  $10^{-2}\mu\text{ m}$ ) croissent par des processus de condensation et de coagulation jusqu'à atteindre un diamètre moyen allant de 0.1 à 1  $\mu\text{m}$ . Les aérosols sulfatés constituent le principal type d'aérosol secondaire.

En moyenne annuelle, plusieurs centaines de millions de tonnes d'aérosols sont émises, qu'ils soient de sources naturelles ou anthropiques. Le tableau 2.2 présente le détail des quantités annuelles d'aérosols émis, leurs durées de vie et leurs contenus intégrés dans une colonne atmosphérique (cela correspond à la masse totale de l'aérosol considéré contenue dans une colonne atmosphérique de section unité, elle s'exprime en  $\text{mg.m}^{-2}$ ).

Dans la suite, l'accent sera mis sur les aérosols stratosphériques, l'un des sujets de cette thèse.

Source	Flux (Mt/an)	Durée de vie (journée)	Contenu intégré ( $\text{mg/m}^2$ )
<b>Aérosols naturels</b>			
<i>Aérosols primaires</i>			
Aérosol minéral (désertique)	900 - 1500	4	19 - 33
Sel marin	2300	1	3
Poussière volcanique	33	4	0,7
Aérosol organique	50	4	1
<i>Aérosols secondaires</i>			
Sulfates biogéniques	70	5	2
Sulfates volcaniques	20	10	1
Substances organiques d'hydrocarbures biogéniques	20	5	0,6
Total naturel	3393 - 3993		27.3 - 41.3
<b>Aérosols anthropogéniques</b>			
<i>Aérosols primaires</i>			
Aérosol minéral (désertique)	0 - 600	4	0 - 13
Poussière industrielle	40	4	0.9
Carbone suie	14	7	0.6
Carbone organique	54	6	1.8
<i>Aérosols secondaires</i>			
Sulfates	140	5	3.8
Aérosols organiques	20	7	0.8
Total anthropogénique	268 - 868		7.9 - 20.9

TAB. 2.2 – Estimation des émissions annuelles globales des principaux aérosols pendant les années 1990, (d'après Ramanathan et al., 2001).

### 2.1.2.2 Les aérosols stratosphériques

Depuis les effets optiques spectaculaires dus à l'éruption explosive du Krakatoa en 1880, les scientifiques se sont interrogés sur la présence d'éventuelles poussières dans la stratosphère. Il fallut cependant attendre les années 1960 pour que Junge collecte les premiers échantillons de ces poussières et démontre qu'elles sont composées d'une solution aqueuse d'acide sulfurique en surfusion [Junge and Manson, 1961, Junge, 1963]. Ces aérosols sont issus de la conversion gaz-particule de l'acide sulfurique. Ils sont constitués d'environ 75% en masse d'acide sulfurique et 25% d'eau [Rosen, 1971]. Le temps de résidence moyen des aérosols stratosphériques est de l'ordre d'une année [Thomason et al., 2006]. Au-delà de 30 - 35 km, il n'y a plus condensation de l'acide sulfurique et les aérosols s'évaporent. On distingue les aérosols de fond, les aérosols volcaniques et les nuages stratosphériques polaires (PSC, pour Polar Stratospheric Cloud).

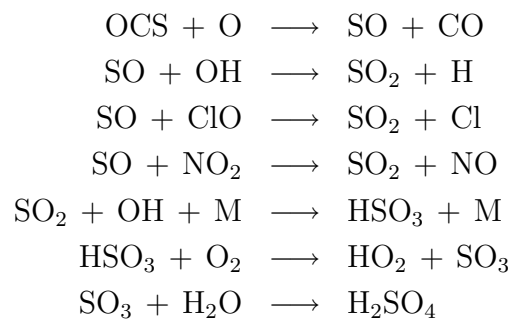
**Les aérosols de fond** Dans la troposphère, l'acide sulfurique a une durée de vie de l'ordre de la minute et ne peut donc pas être transporté jusqu'à la stratosphère. Par conséquent, la majorité de l'acide sulfurique stratosphérique est générée à partir des gaz précurseurs soufrés qui pénètrent la stratosphère aux niveaux des tropiques : le sulfure de carbone (OCS également appelé oxysulfure de carbone) et le dioxyde de soufre ( $\text{SO}_2$ ) principalement.

OCS est une molécule qui a une durée de vie de 7 ans [Seinfeld and Pandis, 1998] dans la troposphère lui conférant ainsi la possibilité d'atteindre la stratosphère. Une partie du OCS ayant atteint la stratosphère est alors oxydée en  $\text{SO}_2$  puis en  $\text{H}_2\text{SO}_4$ . Les principales sources de OCS dans l'atmosphère sont (par ordre d'importance selon Kettle et al. [2002]) : l'oxydation troposphérique du diméthylsulfure (DMS :  $(\text{CH}_3)_2\text{S}$ ) issu du plancton marin, l'oxydation troposphérique de  $\text{CS}_2$  d'origines industrielle et marine et les échanges gazeux entre l'atmosphère et les océans. Le sulfure de carbone est alors transporté dans la stratosphère à travers la tropopause tropicale. L'instrument ATMOS (Atmospheric Trace MOlecule Spectroscopy experiment) mesura les distributions verticales de OCS lors de missions à bord de la navette spatiale entre 1985 et 1994. Ces mesures révèlent des concentrations de l'ordre de 460 à 480 pptv dans la haute troposphère et de 75 à 280 pptv à 25 km [Irion et al., 2002].

Les injections anthropiques de  $\text{SO}_2$  proviennent principalement de la combustion des énergies fossiles et se situent surtout dans l'hémisphère nord [Moller, 2002]. Les molécules de  $\text{SO}_2$  diffusent vers la stratosphère mais en petite quantité : la concentration moyenne de  $\text{SO}_2$  au niveau de la tropopause varie de plusieurs dizaines à plusieurs centaines de pptv [Thomason et al., 2006].

Les réactions chimiques menant à la formation de l'acide sulfurique à partir de OCS et de  $\text{SO}_2$  sont résumées dans le tableau 2.3. Elles font intervenir d'autres composés tels  $\text{ClO}$  ou  $\text{NO}_2$ . Les réactions de photodissociations de OCS et de  $\text{SO}_2$  ne sont pas indiquées dans ce tableau.

En dehors des périodes de fort volcanisme, OCS constitue donc la principale source d'aérosols stratosphériques de fond. Le cycle atmosphérique du soufre est donc le régulateur de la quantité d'aérosols sulfatés stratosphériques. Dans la stratosphère, la quantité maximale d'aérosols sulfatés se trouve dans une couche de 5 à 10 km d'épaisseur centrée vers 20 km. Dans cette couche, connue sous le nom de couche de Junge, la concentration maxi-



TAB. 2.3 – Réactions chimiques principales des espèces soufrées menant à la formation de l’acide sulfurique.

male des particules est de 1 à 10 cm<sup>-3</sup> [Junge and Manson, 1961].

**Les aérosols volcaniques** Les émissions naturelles de SO<sub>2</sub> proviennent principalement du volcanisme. Si l’éruption volcanique est suffisamment énergétique, le panache peut atteindre directement la stratosphère y injectant ainsi dioxyde de soufre, HCl et autres gaz volatils [Coffey, 1996]. A la suite de l’explosion du volcan El Chichòn (Mexique, 1982), 10 mégatonnes de dioxyde de soufre furent émises dans l’atmosphère [Bluth et al., 1992] et 19 mégatonnes après l’explosion du mont Pinatubo aux Philippines en juin 1991 [Guo et al., 2004]. Cependant, il est difficile de quantifier la part de SO<sub>2</sub> ayant atteint la stratosphère et encore plus de déterminer la quantité d’aérosols sulfatés créés suite à cette injection. D’après McCormick et Veiga [1992], l’analyse des données du satellite SAGE II a montré que 12 mégatonnes d’aérosols sulfatés furent créées dans la stratosphère suite à l’éruption d’El Chichòn et 20 à 30 mégatonnes après celle du Pinatubo. La figure 2.3 montre l’évolution de l’épaisseur optique stratosphérique à 1020 nm avant et après l’éruption du Pinatubo. Il apparaît clairement que cette éruption a modifié longuement la charge en aérosol de la stratosphère. Deux ans et demi après (figure D), la quantité d’aérosols stratosphériques a considérablement diminué du fait de la sédimentation mais, la situation stratosphérique n’est pas encore revenue à la situation ”pré-Pinatubo”.

Il est à noter que des aérosols non sulfatés ont également été occasionnellement observés dans la stratosphère : des particules d’origines météoritiques [Murphy et al., 1998], des particules composées de carbone élémentaire (suies) [Pueschel et al., 2000] et des particules provenant des incendies des forêts boréales canadienne et russe [Fromm et al., 2000].

### 2.1.2.3 Les nuages stratosphériques polaires

Le terme de nuage stratosphérique polaire fut introduit pour la première fois par McCormick et al. [1982] suite aux mesures d’extinctions élevées de l’instrument SAM (Stratospheric Aerosol Measurement) II. Ils firent également la corrélation entre l’apparition de ces PSC et les très basses températures (de 188 à 198 K) relevées par sonde aux mêmes moments et endroits que les mesures de SAM II. En effet, la formation de PSC

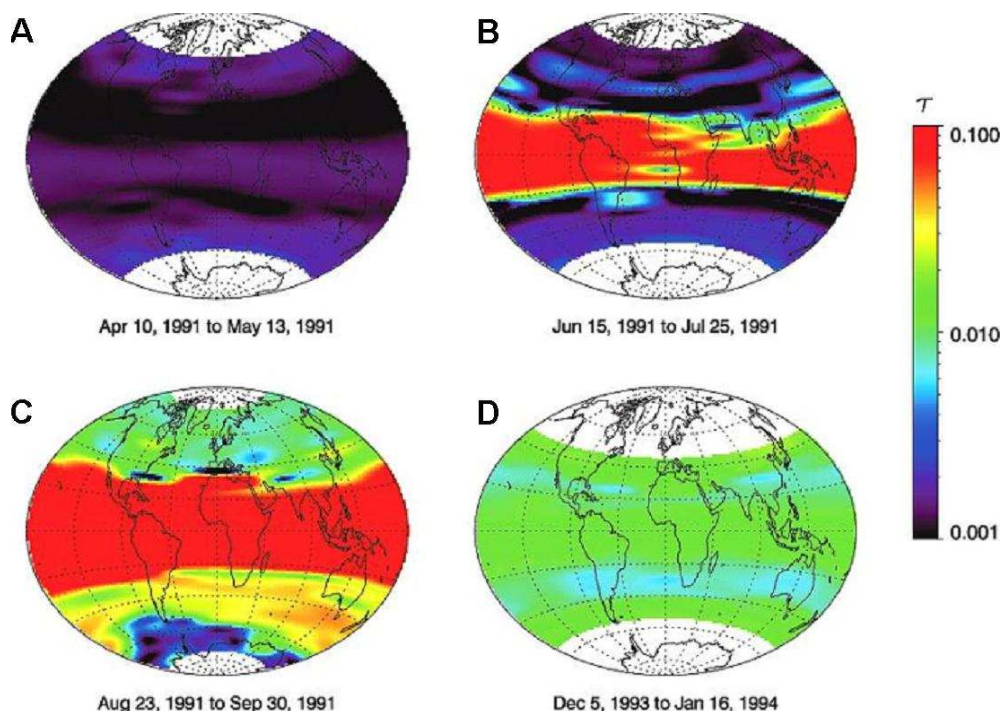


FIG. 2.3 – Evolution de l'épaisseur optique à 1020 nm avant et après l'éruption du Mont Pinatubo (juin 1991) d'après les données de l'instrument SAGE II.

requiert des températures très basses atteintes pendant les hivers polaires. Les PSC apparaissent entre décembre et mars en Arctique et entre mai et septembre en antarctique. Il existe trois types de PSC [Rivière, 2001] :

- Les **PSC de type Ia** ils sont probablement formés de NAT (acronyme anglais pour désigner l'Acide Nitrique Trihydraté). Ce sont des cristaux solides qui se forment à des températures inférieures à 195 K. Ils sont composés de particules contenant 3 molécules d'eau pour 1 molécule d'acide nitrique ( $3\text{H}_2\text{O} - \text{HNO}_3$ ). Leur taille moyenne est de l'ordre de 1 à 3  $\mu\text{m}$ . Notons que d'autres hydrates d'acide nitrique ont été proposés tels le dihydrate d'acide nitrique (NAD) ou le monohydrate d'acide nitrique (NAM) mais que les conditions requises pour leurs formations sont très rarement rencontrées dans la stratosphère [Salcedo et al., 2000].
- Les **PSC de type Ib ou STS** (Supercooled Ternary Solution). Ce sont des particules sphériques liquides de solution ternaire ( $\text{HNO}_3$ ,  $\text{H}_2\text{SO}_4$  et  $\text{H}_2\text{O}$ ). Ils se forment à des températures inférieures à 192 K. Leur dimension est inférieure au micromètre.
- Les **PSC de type II** sont des cristaux de glace dont la taille moyenne varie entre 1 et 10  $\mu\text{m}$ . Ils se forment à la température de congélation de la glace dans la stratosphère : 188 K. Ces températures ne sont que très rarement atteintes au-dessus de l'Arctique.



### 2.1.2.4 Distributions en taille

Trois différents modes de taille sont définis pour les aérosols : le mode de nucléation (ou mode fin, diamètre de l'ordre du centième de  $\mu\text{m}$ ), le mode d'accumulation (diamètre de l'ordre du dixième de  $\mu\text{m}$ ) et le mode grossier (diamètre supérieur au  $\mu\text{m}$ ).

La distribution en taille des aérosols stratosphériques et l'indice de réfraction permettent de déterminer par le calcul les autres propriétés physiques de ces particules. Il est possible de déterminer notamment la variabilité spectrale de leur propriété d'extinction de la lumière (absorption et diffusion). La distribution en taille de la population d'aérosol est alors représentée par une fonction mathématique choisie de manière à la reproduire au mieux.

La fonction analytique la plus couramment utilisée est la loi log-normale (LND). Cette loi représente raisonnablement bien les observations [O'Neill et al., 2000]. Elle s'écrit :

$$n(r) = \frac{dN(r)}{dr} = \frac{N_0}{r \ln \sigma_g \sqrt{2\pi}} \exp \left[ -\frac{1}{2} \left( \frac{\ln r - \ln r_m}{\ln \sigma_g} \right)^2 \right] \quad (2.1)$$

Avec :

- $n(r) dr$  : le nombre de particules par unité de volume ayant un rayon compris entre  $r$  et  $r + dr$ .
- $N_0$  : la concentration totale d'aérosols en  $\text{cm}^{-3}$
- $r_m$  : le rayon médian de la distribution
- $\sigma_g$  : la déviation standard géométrique de la distribution

A partir de la distribution en taille, on définit la densité de surface  $S$  et de volume  $V$  de particules sphériques. La connaissance de ces grandeurs permet de modéliser les réactions hétérogènes ayant lieu sur la surface et à l'intérieur des aérosols :

$$S = \int_0^\infty s(r) dr = \int_0^\infty (4\pi r^2) n(r) dr \quad (2.2)$$

$$V = \int_0^\infty v(r) dr = \int_0^\infty \left( \frac{4}{3} \pi r^3 \right) n(r) dr \quad (2.3)$$

où  $s(r)$  représente la distribution en surface des particules par unité de volume et  $v(r)$  la distribution en volume des particules par unité de volume. Cinq mois après l'éruption du Mont Pinatubo (juin 1991), la densité de surface des aérosols stratosphériques a atteint  $35 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$  aux latitudes moyennes alors que celle des aérosols de fond est en moyenne de  $0.5$  à  $1 \mu\text{m}^2\text{cm}^{-3}$  [Seinfeld and Pandis, 1998].

Hansen et Hovenier [1974] introduisirent les notions de rayons effectifs ( $r_{eff}$ ) et de variances effectives ( $v_{eff}$ ) pour rendre compte du fait qu'une sphère de rayon  $r$  diffuse la lumière proportionnellement à sa surface.  $r_{eff}$  se définit ainsi par :

$$r_{eff} = \frac{\int_{r_1}^{r_2} (4\pi r^2) r n(r) dr}{\int_{r_1}^{r_2} (4\pi r^2) n(r) dr} = \frac{\int_{r_1}^{r_2} \pi r^3 n(r) dr}{\int_{r_1}^{r_2} \pi r^2 n(r) dr} \quad (2.4)$$

et  $v_{eff}$ , pour caractériser la largeur de la distribution, par :

$$v_{eff} = \frac{\int_{r_1}^{r_2} (r - r_{eff})^2 \pi r^2 n(r) dr}{r_{eff}^2 \int_{r_1}^{r_2} \pi r^2 n(r) dr} \quad (2.5)$$

La présence de  $r_{eff}^2$  au dénominateur permet à la variance effective de rester sans dimension. Par la suite, on utilisera plus fréquemment le rayon effectif et la variance effective pour caractériser une distribution d'aérosols plutôt que les paramètres  $r_m$  et  $\sigma_g$ . Pour une distribution log-normale, le calcul de  $r_{eff}$  et de  $v_{eff}$  donne des expressions simples [Lenoble and Brogniez, 1984] :

$$r_{eff} = r_m \exp(2.5 \ln^2 \sigma_g) \quad (2.6)$$

$$v_{eff} = \exp(\ln^2 \sigma_g) - 1 \quad (2.7)$$

D'après Thomason et al. [2006], les rayons effectifs des aérosols de fond peuvent atteindre  $0.3 \mu\text{m}$  et ceux des aérosols volcaniques,  $0.5 \mu\text{m}$ . Les variances effectives des distributions en taille des aérosols de fond sont d'à peu près 0.25 et celle des aérosols volcaniques 0.5 [Lenoble and Brogniez, 1985].

Lorsque plusieurs modes de taille sont présents au sein d'une population d'aérosol, la distribution en taille caractérisant au mieux cette population peut être bimodale voire trimodale : il suffit dans ce cas de faire la somme des distributions log-normales ayant les paramètres  $r_m$  et  $\sigma_g$  et  $N_0$  appropriés. La figure 2.4 montre 3 distributions log-normales correspondant aux 3 modes de taille définis en début de ce paragraphe.

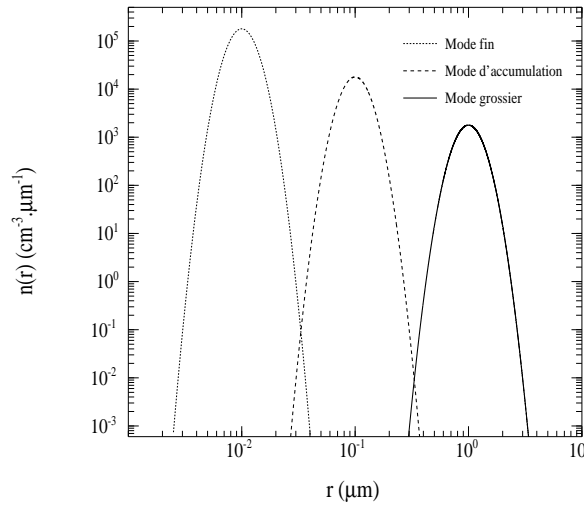


FIG. 2.4 – Distribution en taille des aérosols selon le modèle log-normal pour  $\sigma_g = 1.25$  et  $r_m = 0.01, r_m = 0.1$  et  $r_m = 1 \mu\text{m}$

### 2.1.2.5 Effets climatiques des aérosols stratosphériques

Bien que moins nombreux que leurs cousins troposphériques, les aérosols stratosphériques ont un impact radiatif non négligeable. Leur durée de vie relativement longue (de l'ordre de l'année) leur permet de se répartir de façon homogène autour du globe.

Seul l'effet direct intervient ici du fait de la quasi-absence d'eau dans la stratosphère. Les aérosols stratosphériques piègent donc une partie du rayonnement solaire incident et le renvoient vers l'espace. Cet effet est également appelé effet parasol. Il s'ensuit un refroidissement de la surface de la Terre et un réchauffement de la stratosphère. L'effet direct des aérosols stratosphériques est évidemment plus important lors des épisodes volcaniques intenses. Après l'éruption du volcan El Chichòn, la stratosphère s'est réchauffée de 4 K [Labitzke et al., 1983] et la température au sol a diminué de 0.5 K [Chazette et al., 1995]. En ce qui concerne le Mont Pinatubo, la température stratosphérique a augmenté de 3.5 K [Labitzke and McCormick, 1992] et celle du sol a diminué de 0.7 K. Hors période volcanique intense, le forçage radiatif induit par les aérosols stratosphériques est de l'ordre de  $-0.1$  à  $-0.4 \text{ W.m}^{-2}$ , celui induit par les aérosols issus de l'éruption du Mont Pinatubo est de  $-0.6$  à  $-5 \text{ W.m}^{-2}$  [Brogniez et al., 1999].

### 2.1.2.6 Effets chimiques des aérosols stratosphériques

Les aérosols stratosphériques ont également une action sur le système chimique de la stratosphère (cf section 2.2.3). Chaque hiver, les masses d'air stratosphérique polaires, chargées notamment en aérosols sulfatés, sont isolées à l'intérieur du vortex polaire. Les masses d'air se refroidissent alors. Selon la température atteinte, les aérosols sulfatés peuvent alors servir de noyau de condensation pour la formation de nuages stratosphériques polaires (PSC pour Polar Stratospheric Cloud). Ces PSC se situent principalement dans la basse stratosphère, là où la concentration en aérosol est la plus importante. La surface des PSC et même celle des aérosols sulfatés sert alors de support à la chimie hétérogène. Les aérosols stratosphériques sulfatés interviennent donc fortement dans les processus de chimie hétérogène et plus particulièrement dans ceux menant à l'appauvrissement de la couche d'ozone polaire.

En dehors du vortex polaire, les aérosols stratosphériques sont également le support à certaines réactions de chimie hétérogène menant à la destruction de l'ozone dans la stratosphère [Solomon, 1999].

## 2.2 La stratosphère

### 2.2.1 La tropopause

La tropopause fut découverte en 1902 par Léon Teisserenc de Bort qui étudia les profils verticaux de température, de pression et d'humidité jusqu'à 11 km à l'aide de ballons équipés de sondes. D'un point de vue général, la tropopause marque la frontière entre la troposphère et la stratosphère. Elle constitue la zone de séparation entre une région efficacement brassée par des courants horizontaux et verticaux (la troposphère) et une région où la stabilité verticale règne et où le brassage horizontal est efficace. L'altitude de la tropopause varie géographiquement : elle est plus élevée à l'équateur (environ 17 km) et diminue avec la latitude pour atteindre 7 - 8 km aux pôles. La température à la tropopause est ainsi plus froide dans les zones inter-tropicales (environ 190 K) que dans les régions polaires (environ 220 K) Elle présente également une variabilité saisonnière : elle est plus élevée l'été que l'hiver.

Il est important de situer correctement l'altitude de la tropopause. Par exemple, la détermination de l'épaisseur optique stratosphérique nécessite une connaissance précise de

l'altitude de la tropopause. En particulier, lors d'analyse de profils verticaux d'extinction, il est important de savoir où est la tropopause pour identifier les nuages. Enfin, les études d'injections de matière dans la stratosphère nécessitent la connaissance de l'altitude de la tropopause.

Il existe différentes définitions de la tropopause : thermique, dynamique et chimique. Je les présente ci-dessous.

### 2.2.1.1 Définition thermique

La définition thermique de la tropopause est la définition officielle acceptée par l'OMM. Elle dit que la tropopause correspond au niveau le plus bas où le gradient thermique vertical, en valeur algébrique, devient supérieur ou égal à -2 K/km, sous réserve que le gradient de température reste au moins égale à -2 K/km sur une couche de 2 km au-dessus de ce niveau.

En utilisant cette définition, la variabilité géographique de l'altitude de la tropopause s'explique par le fait que l'énergie solaire incidente est plus importante à l'équateur que dans les autres régions du globe et la variabilité saisonnière par le fait que cette même énergie est plus importante l'été que l'hiver. L'altitude de la tropopause des régions inter-tropicales étant plus élevée que celle des régions polaires, la température à la tropopause est plus faible à l'équateur (190 K) qu'aux pôles (220 K).

### 2.2.1.2 Définition dynamique

La deuxième définition est plus couramment utilisée par les dynamiciens pour l'étude des transferts de matière à travers la tropopause notamment. Elle fait appel au concept de vorticité potentielle (PV, l'acronyme anglais pour potential vorticity). Il s'agit d'une grandeur physique représentant la rotation locale d'un fluide ainsi que sa stabilité verticale. La vorticité potentielle est conservée au cours d'une évolution isentrope (c'est à dire adiabatique) et pour un mouvement sans frottements. Dans la basse et moyenne stratosphère, les mouvements peuvent être considérés adiabatiques et sans frottements pendant environ 2 semaines. Pour une masse d'air de température  $T$  et de pression  $p$ , elle s'écrit :

$$PV = -g(\xi_p + f) \frac{\partial \theta}{\partial p} \quad (2.8)$$

avec :

- $g$  : l'accélération de la pesanteur,
- $\theta$  : la température potentielle. Elle correspond à la température qu'une parcelle d'air sec à la température  $T$  et à la pression  $p$  acquerrait si on la dilatait ou la compressait adiabatiquement à une pression standard  $P_0 = 1000$  hPa. Elle est donnée par :

$$\theta = T \left( \frac{P_0}{p} \right)^{\frac{R}{C_p}} \quad (2.9)$$

où  $R$  est la constante des gaz parfaits et  $C_p$  la chaleur spécifique à pression constante de l'air ( $C_p = 29.15 \text{ J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ),

- $f$  : le paramètre de coriolis (positif dans l'hémisphère nord et négatif au sud) donné par :

$$f = 2 \mid \Omega \mid \sin \phi \quad (2.10)$$

- où  $\Omega$  est la vitesse angulaire de rotation de la Terre (de l'ordre de  $7.3 \cdot 10^{-5} \text{ rad.s}^{-1}$ ) et  $\phi$  la latitude,
- $\xi_p$  : la composante verticale du rotationnel de champ de vent.

La vorticité potentielle est donc une grandeur couplant les propriétés dynamiques (via  $\xi_p$ ) et thermodynamiques (via  $\theta$ ) de l'écoulement d'un fluide. Elle s'exprime en PVU<sup>1</sup>. La vorticité potentielle d'une masse d'air peut être utilisée pour suivre son évolution temporelle sur une trajectoire adiabatique. Elle présente de forts gradients horizontaux au niveau du vortex polaire (dus au terme correspondant au rotationnel du champ de vent) permettant d'en délimiter les contours (voir section 2.2.2.2). Elle croît avec l'altitude avec un fort gradient vertical au niveau de la tropopause permettant de fixer l'altitude de la tropopause dynamique. Celle-ci est ainsi définie par une valeur particulière de la vorticité potentielle. Plusieurs valeurs seuils ont été proposées : 1 PVU [Shapiro, 1978], 2 PVU [Appenzeller et al., 1996], 3 PVU [Spaete et al., 1994] et 3.5 PVU [Hoerling et al., 1991]. Actuellement, la valeur la plus couramment utilisée est 2 PVU.

A l'équateur, cette surface se situe à approximativement 15 km d'altitude. Lorsqu'on se déplace vers les pôles, le paramètre de coriolis augmente ce qui explique la diminution de l'altitude de la tropopause de l'équateur aux pôles où elle se situe à une altitude de 7 - 8 km.

A grande échelle, la tropopause dynamique ne diffère que très peu de la tropopause thermique. Cependant, à plus petite échelle, des processus sous-mailles (convection, déferlement d'onde) peuvent faire varier l'altitude de la tropopause dynamique. Ces effets ne sont pas pris en compte dans la définition thermique.

### 2.2.1.3 Définition chimique

La définition chimique de la tropopause est basée sur le profil vertical du rapport de mélange de l'ozone (en ppbv<sup>2</sup>). Bethan et al. [1996] définissent la tropopause chimique comme étant le plus bas niveau où les 3 critères suivants sont vérifiés :

1. le gradient vertical (évalué sur 200 m) du rapport de mélange de l'ozone est supérieur à  $60 \text{ ppbv.km}^{-1}$ .
2. le rapport de mélange de l'ozone est supérieur à 80 ppbv.
3. Les rapports de mélange de l'ozone immédiatement au-dessus sont supérieurs à 110 ppbv.

Selon Bethan et al. [1996], la définition chimique de la tropopause est robuste en dehors des cas particuliers où la tropopause devient ambiguë : lors d'échanges de matière entre la troposphère et la stratosphère. La tropopause chimique se situe en moyenne 800 m plus bas que la tropopause thermique.

Il existe ainsi plusieurs définitions de la tropopause. Le choix de la définition adéquate sera guidé par le type des études entreprises. Dans cette thèse, on utilisera la définition la plus adaptée à l'étude considérée.

---

<sup>1</sup>pour PV Unit -  $1 \text{ PVU} = 10^{-6} \text{K.m}^2.\text{kg}^{-1}.\text{s}^{-1}$

<sup>2</sup>parts per billion by volume =  $10^{-9} \text{ ppv}$

## 2.2.2 La dynamique stratosphérique

### 2.2.2.1 Circulation générale

La stratosphère est un domaine stratifié et stable verticalement du fait d'un gradient vertical de température positif. Les mouvements horizontaux peuvent quant à eux être très rapides.

Dans l'hémisphère d'été, les vents troposphériques d'ouest (nommés jets) s'affaiblissent dans la basse stratosphère puis disparaissent laissant s'installer ainsi un régime de vents d'est dans l'atmosphère moyenne (20 - 90 km).

Dans l'hémisphère d'hiver, le courant-jet troposphérique d'ouest est moins fort dans la basse stratosphère mais, les régimes de vent reste d'ouest dans toute la stratosphère.

La circulation méridienne explique la distribution de l'ozone stratosphérique. En effet, l'ozone est principalement produit aux basses latitudes et c'est au pôle que l'on retrouve les plus grandes quantités d'ozone. Il existe donc une circulation transportant l'ozone des basses latitudes vers les hautes latitudes. Cette circulation est connue sous le nom de circulation de Brewer-Dobson [Brewer, 1949, Dobson et al., 1929]. Les masses d'air montent dans les régions tropicales puis migrent vers les pôles. Cette circulation est très lente (10 m/jour). Les gaz précurseurs des aérosols stratosphériques et les aérosols eux-mêmes sont également transportés et répartis dans la stratosphère via la circulation de Brewer-Dobson. La figure 2.5 issue de Hamill et al. [1997] présente la circulation de Brewer-Dobson ainsi que le cycle de vie des aérosols stratosphériques (cf 2.1.2).

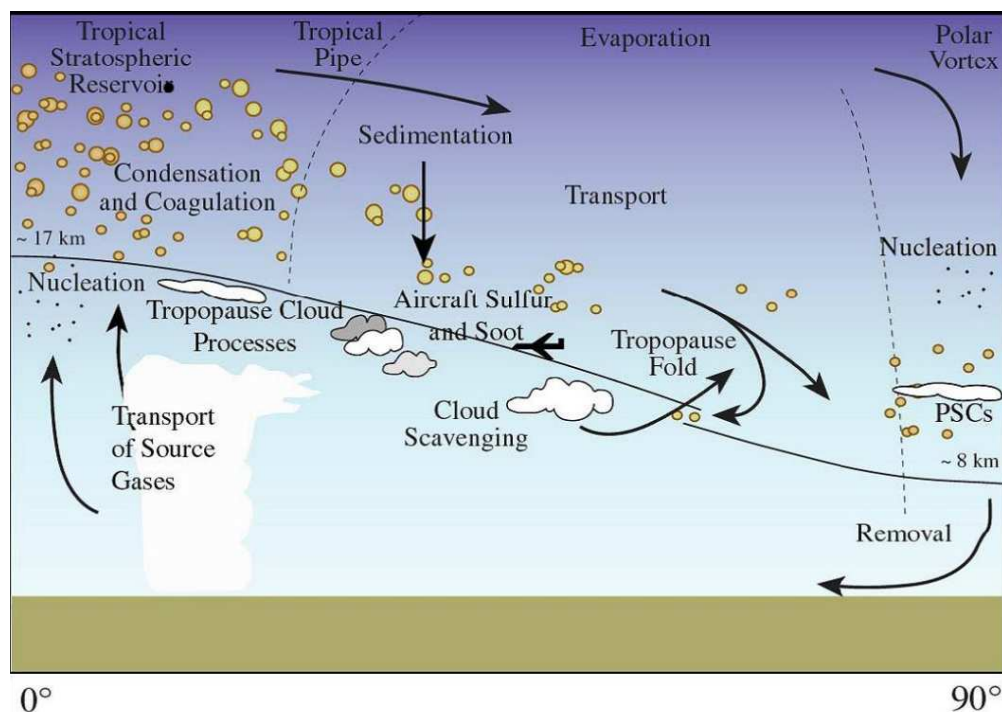


FIG. 2.5 – Cycle de vie des aérosols stratosphériques (figure issue de Hamill et al. [1997]). La répartition méridienne des aérosols se fait via la circulation de Brewer-Dobson représentée par les flèches. Les différents processus de formation des aérosols stratosphériques y sont également représentés (cf 2.2.2.1).

### 2.2.2.2 Le vortex polaire

Le vortex polaire est défini comme étant la persistance d'un vaste tourbillon en rotation cyclonique autour du pôle. Le vortex polaire commence à se former à l'automne quand les différences de température entre les zones de moyennes latitudes et les pôles deviennent importantes. Le régime de vent d'est d'été de la moyenne atmosphère commence alors à s'intensifier. A l'arrivée de l'hiver, le gradient thermique continue de s'amplifier tant et si bien que le régime de vent d'est s'intensifie de plus en plus. Ces vents d'est prennent également de l'ampleur avec l'altitude jusqu'à la mésosphère et acquièrent la force d'un jet : le courant-jet de la nuit polaire. Ainsi, les masses d'air polaire sont isolées des masses d'air des moyennes latitudes et ne bénéficient donc plus de leur apport d'air plus chaud. Au printemps, le soleil éclaire de nouveau la région polaire contribuant ainsi à la réchauffer et donc à diminuer le gradient thermique avec les moyennes latitudes. C'est à cette période que le vortex polaire se délite.

La vorticité potentielle est la grandeur physique qui permet de définir la frontière du vortex polaire : elle correspond au maximum de gradient de vorticité potentielle [Nash et al., 1996]. D'autres auteurs utilisent un contour de vorticité potentielle particulier pour délimiter le vortex polaire : Tuck et al. [1992] ont considéré les zones dont la vorticité potentielle est inférieure à  $30 \text{ PVU}$  comme étant à l'extérieur du vortex.

La circulation de Brewer-Dobson assure l'approvisionnement des masses d'air polaires en aérosols et espèces gazeuses (ozone, les oxydes d'azotes, les CFC,...). Le vortex polaire constitue alors une enceinte quasiment fermée favorisant les réactions chimiques de destruction de l'ozone polaire.

## 2.2.3 Eléments de chimie de la stratosphère

Le système chimique stratosphérique est principalement régi par les réactions chimiques intervenant dans l'équilibre de l'ozone. Nous nous intéresserons donc dans ce paragraphe à l'étude de la distribution globale de l'ozone stratosphérique.

### 2.2.3.1 Les propriétés de l'ozone

L'ozone stratosphérique représente environ 90% de la quantité totale d'ozone atmosphérique. La couche d'ozone stratosphérique est d'une importance fondamentale pour le maintien de la vie sur Terre. L'ozone a la particularité physique d'absorber le rayonnement solaire ultraviolet entre 200 et 320 nm (bandes de Hartley et Huggins) nous protégeant ainsi de ses effets néfastes sur la biosphère. L'ozone est aussi un gaz à effet de serre : il absorbe le rayonnement solaire vers  $9.6 \mu\text{m}$  (bande de ro-vibration).

Comme nous l'avons signalé dans l'introduction, après la découverte de la diminution de la quantité d'ozone stratosphérique au-dessus du continent antarctique [Farman et al., 1985], la communauté scientifique s'est mobilisée afin de comprendre ce phénomène. La figure 2.6 représente les profils verticaux d'ozone mesurés par ballon au-dessus du pôle sud en octobre 1993 et 1995 et en août 1993. On constate aisément l'ampleur du phénomène. La couche d'ozone arctique présente également un appauvrissement mais d'ampleur moindre.

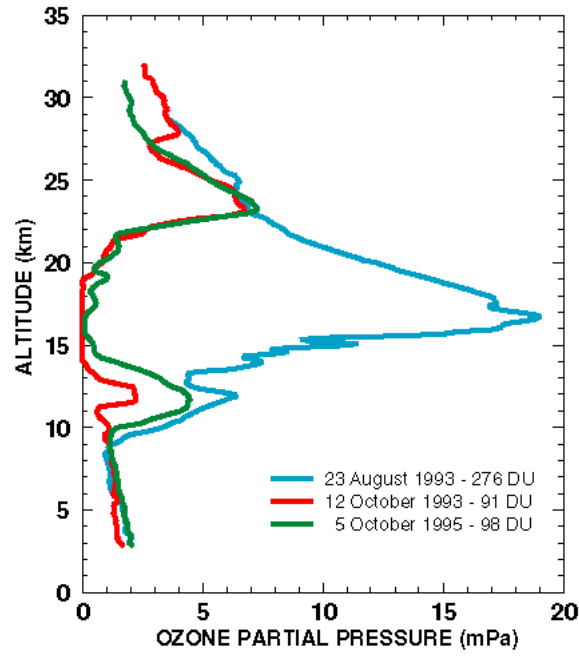
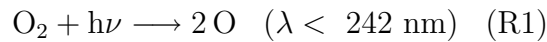


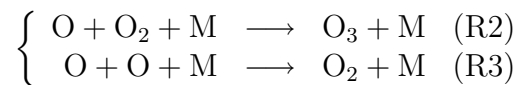
FIG. 2.6 – Profil vertical de la pression partielle d’ozone (mPa) mesurée par sondage ballon au pôle sud le 12 octobre 1993 (en rouge), le 23 août 1993 (en bleu) et le 5 octobre 1995 (en vert).

### 2.2.3.2 Le cycle de Chapman

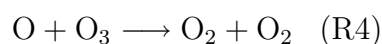
En 1930, le physicien Sydney Chapman propose un cycle simple expliquant l’équilibre de l’ozone stratosphérique à partir des composés oxygénés uniquement [Chapman, 1930]. La première étape de ce cycle est la photodissociation de l’oxygène moléculaire. L’oxygène moléculaire absorbe le rayonnement ultraviolet entre 175 nm et 240 nm. Ce rayonnement UV n’est disponible que dans la haute stratosphère (et au-dessus) :



Les deux réactions suivantes, utilisant comme réactifs les atomes d’oxygène formés, sont en concurrence. La première est la réaction de formation de l’ozone et la deuxième est une réaction de recombinaison de l’oxygène moléculaire :

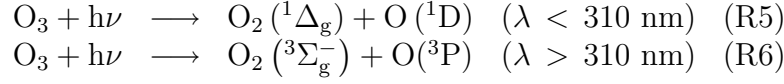


où M est une molécule d’azote ou d’oxygène. La réaction de recombinaison R3 étant très lente, c’est la réaction de formation de l’ozone R2 qui est prépondérante. L’ozone peut être détruit selon la réaction suivante :





L’ozone peut aussi être photodissocié pour donner O et O<sub>2</sub>. L’état énergétique des produits formés dépend directement de la longueur d’onde du rayonnement incident :



L’atome d’oxygène et la molécule de dioxygène formés sont dans leurs états fondamentaux (O(^3P) et O<sub>2</sub>(^3Σ<sub>g</sub><sup>-</sup>)) pour la réaction R6 et dans un de leurs états excités (O<sub>2</sub>(^1Δ<sub>g</sub>) et O(^1D)) pour R5. Ils reviennent très rapidement dans leur état fondamental par collision avec les principales molécules de l’air. Dans le visible, l’ozone absorbe le rayonnement compris entre 410 et 850 nm (bande de Chappuis). Les sections efficaces correspondantes sont beaucoup plus faibles que celle de la bande de Hartley-Huggins de telle sorte que la bande de Chappuis ne joue qu’un rôle mineur dans le cycle de Chapman.

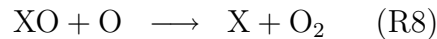
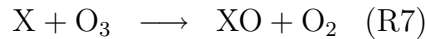
Le cycle de Chapman connut un fort succès. Il permet d’expliquer pourquoi l’ozone présente un maximum en rapport de mélange vers 15 - 20 km aux pôles (cf figure 2.6) et vers 25 - 30 km à l’équateur. En effet, la production de l’ozone dépend de 2 paramètres variant en sens inverse avec l’altitude : la concentration d’oxygène décroît avec l’altitude et l’intensité du rayonnement solaire augmente avec l’altitude.

La production de l’ozone dépend fortement de l’intensité du rayonnement incident. C’est pourquoi la zone de production de l’ozone se situe à l’équateur, la circulation de Brewer-Dobson se chargeant ensuite de transporter cet ozone ainsi produit vers les régions de hautes latitudes où il s’accumule (cf 2.2.2.1).

Dans les années 60, les expérimentateurs constatèrent que les concentrations d’ozone observées n’étaient pas en accord complet avec les résultats issus de la théorie de Chapman, cette dernière surévaluant les valeurs observées. D’autres processus de destruction de l’ozone ont alors été considérés.

### 2.2.3.3 Cycles catalytiques de destruction de l’ozone à l’échelle globale

La nécessité de faire intervenir d’autres processus de destruction de l’ozone a été soulignée dans le paragraphe précédent. Ces réactions font intervenir des composants mineurs de la stratosphère qui y joueront le rôle de catalyseur. Les cycles de destruction les plus simples sont du type :

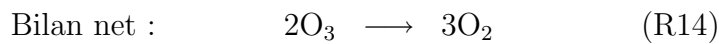
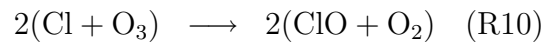


Où X est un radical qui peut être OH [Bates and Nicolet, 1950], NO [Crutzen, 1970], Cl [Stolarski and Cicerone, 1974] ou Br [McElroy et al., 1986]. Ils sont très efficaces car les radicaux X sont régénérés à la fin du cycle et peuvent donc en catalyser d’autres avant d’être transformés en espèces moins ou non réactives. Ces cycles catalytiques de destruction de l’ozone ne peuvent pas expliquer à eux seuls la forte diminution de la concentration en ozone observée au printemps dans la basse stratosphère des régions polaires. En effet,

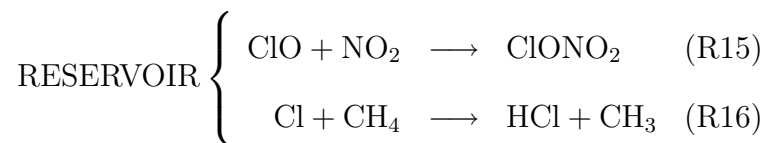
ils nécessitent l'intervention de l'atome d'oxygène or celui-ci n'est disponible en quantité suffisante que dans la haute stratosphère. D'autres processus interviennent donc dans la basse stratosphère.

#### 2.2.3.4 L'ozone aux pôles

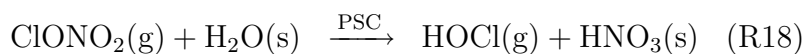
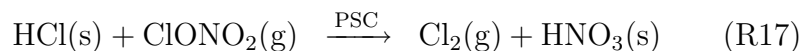
Les réactions mettant en jeu le chlore furent rapidement suspectées de jouer un rôle essentiel dans le processus de destruction de l'ozone polaire. Le cycle suivant compte pour 70% dans la destruction d'ozone observée [Salawitch et al., 1993] :



Les principales sources de composés chlorés dans l'atmosphère sont les CFC (d'origine anthropique uniquement, durée de vie de 40 à 150 ans),  $\text{CCl}_4$  (d'origines naturelle et anthropique, durée de vie de 35 ans) et  $\text{CH}_3\text{Cl}$  (d'origine naturelle, durée de vie de 1 an). Ces molécules dont les durées de vie sont grandes, sont chimiquement stables dans la troposphère. De plus, elles ne sont pas solubles dans l'eau, ce qui leur évite le lessivage. Elles ont donc la possibilité d'atteindre la stratosphère où elles seront photolysées par le rayonnement solaire UV ou oxydées pour produire des atomes de chlore et des molécules de monoxyde de chlore. Les atomes de chlore formés peuvent réagir avec l'ozone selon R7. Ils peuvent aussi se combiner avec le méthane pour former le réservoir inactif  $\text{HCl}$ .  $\text{ClO}$  réagit quant à lui avec  $\text{NO}_2$  pour former l'espèce réservoir  $\text{ClONO}_2$  :

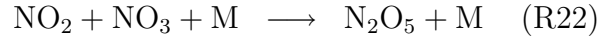
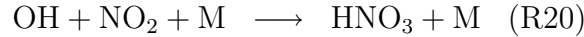


Le cycle de destruction de l'ozone par les composés chlorés s'enclenche seulement si les espèces chlorées réservoirs sont converties en espèces chlorées actives ( $\text{Cl}$  et  $\text{ClO}$ ). Pendant l'hiver, dans les régions polaires, cette activation est accélérée par l'intermédiaire de réactions hétérogènes à la surface des nuages stratosphériques polaires (cf 2.1.2.3) :



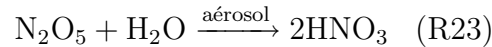
Dès le retour du soleil, le dichlore formé par les réactions R17 et R19 est photodissocié donnant les atomes de chlore actifs qui initieront la chaîne de réactions de destruction de l’ozone selon le cycle représenté par les réactions R10 à R13. L’arrêt de ce cycle de destruction dépend de la quantité de dioxyde d’azote dans la stratosphère. En effet, l’oxyde de chlore formé par R10 peut également réagir avec  $\text{NO}_2$  selon la réaction R15 reconstituant ainsi le réservoir de chlore.

Le cycle des composés azotés est donc très important dans le cycle de destruction de l’ozone. La source des différents oxydes d’azote dans la stratosphère est le protoxyde d’azote ( $\text{N}_2\text{O}$ ). Stable dans la troposphère, cette espèce atteint la stratosphère où elle se combine notamment avec un atome d’oxygène pour donner 2 molécules de monoxyde d’azote ( $\text{NO}$ ). Le monoxyde d’azote ainsi formé se combine avec l’ozone selon le modèle de la réaction R7 pour générer le dioxyde d’azote.  $\text{NO}$  et  $\text{NO}_2$  constituent la famille des  $\text{NO}_x$ . Les espèces réservoirs des  $\text{NO}_x$  sont notamment l’acide nitrique ( $\text{HNO}_3$ ) et le pentoxyde d’azote ( $\text{N}_2\text{O}_5$ ). Ils se forment principalement selon les réactions :



La journée,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{NO}_3$  et  $\text{N}_2\text{O}_5$  sont rapidement photodissociés en  $\text{NO}_2$  dans toute la stratosphère (limitant ainsi R22) ce qui explique que  $\text{N}_2\text{O}_5$  soit essentiellement produit de nuit réduisant par conséquent la quantité de  $\text{NO}_2$  nocturne (R22). Lors de la nuit polaire, la quantité de  $\text{NO}_2$  est ainsi quasiment nulle (réaction R22) : c’est la dénoxyfication.

Le réservoir de  $\text{N}_2\text{O}_5$  formé du fait de la dénoxyfication diminue au cours de la nuit polaire par réactions hétérogènes sur les aérosols sulfatés (dans la basse stratosphère où les aérosols sont en grand nombre) menant à la formation de  $\text{HNO}_3$  :



L’acide nitrique se retrouve ainsi en quantités importantes au niveau des PSC (réactions R17, R18 et R23) s’étant formés autour des aérosols sulfatés. Au retour des rayons du soleil la stratosphère polaire s’enrichit en  $\text{NO}_2$  par le biais de la photolyse de  $\text{HNO}_3$ . La présence de  $\text{NO}_2$  ralentit alors le processus de destruction de l’ozone par la reformation des réservoirs de  $\text{ClONO}_2$  (R15).

Cependant, un autre processus favorise la présence en grande quantité du chlore actif et la destruction de l’ozone : c’est la dénitrification. L’acide nitrique produit par les réactions hétérogènes sur les aérosols est maintenu en phase condensée sur les PSC. Par effet de gravité, les PSC sédimentent entraînant avec eux l’acide nitrique. Dans les conditions de stratosphère polaire dénitrifiée, il faut attendre la rupture du vortex et l’apport extérieur d’air riche en  $\text{NO}_2$  pour désactiver le chlore.

Les régions de latitudes moyennes souffrent également d’un appauvrissement de la couche d’ozone [Solomon, 1999]. Cette diminution est moins importante que celle observée aux pôles car les processus de chimie hétérogène activant les réservoirs de chlore se font

uniquement sur la surface des aérosols stratosphériques. En effet, les températures ne sont pas habituellement suffisamment basses pour assurer la formation de PSC. Néanmoins, Keckhut et al. [2007] ont observé par mesure LIDAR un PSC au-dessus de l'Europe (Observatoire de Haute-Provence, OHP) en janvier 2006 alors que le vortex polaire se trouvait au-dessus de ces régions. Une nette diminution de l'ozone s'en est suivi du fait de l'activation des espèces chlorées par l'ensoleillement. Toutefois, cet événement est très exceptionnel : il s'agit de l'unique observation de PSC en 25 années de mesures systématiques à l'OHP.

Selon certaines études, des mécanismes de chimie hétérogène à la surface des cristaux de glace des cirrus pourraient expliquer les anomalies de concentration en ozone observées aux latitudes moyennes [Reichardt et al., 1996]. Cette question est cependant encore fort controversée aujourd'hui.

## 2.3 Le transfert du rayonnement électromagnétique

La stratosphère est le siège de processus chimiques, dynamiques mais aussi radiatifs. Les interactions entre ces 3 types de processus ne sont pas encore entièrement comprises aujourd'hui. La disponibilité du rayonnement électromagnétique gouverne les réactions photochimiques et celles-ci influencent la répartition des constituants dans l'atmosphère. Ces constituants interagissent avec le rayonnement électromagnétique affectant ainsi le système climatique. Les interactions entre la matière et le rayonnement électromagnétique servent en plus de support à la télédétection des espèces chimiques et des aérosols. Cette section présente les grandes lignes de la théorie du transfert radiatif expliquant les interactions entre les gaz, les particules et le rayonnement.

### 2.3.1 Quelques définitions essentielles

#### 2.3.1.1 La luminance monochromatique

On considère un rayonnement électromagnétique transportant l'énergie  $dE$  se propageant dans la direction  $\vec{s}$  et traversant une surface  $dA$ . L'angle entre la normale à la surface  $dA$  et le vecteur  $\vec{s}$  est noté  $i$ . On note  $dS$  la surface élémentaire perpendiculaire à la direction de propagation du rayonnement. Le rayonnement est contenu dans un angle solide  $d\omega$  centré sur  $\vec{s}$ . La relation entre les surfaces  $dS$  et  $dA$  s'écrit simplement  $dS = dA \cos(i)$  (cf figure 2.7).

Si on se place dans un système de coordonnées sphériques  $(O, r, \theta, \phi)$ , la luminance monochromatique à la longueur d'onde  $\lambda$ ,  $L_\lambda(\theta, \phi)$  reçue dans la direction  $\vec{s}$  correspond à la quantité d'énergie radiative traversant l'unité de surface par unité de temps, de longueur d'onde et d'angle solide :

$$L_\lambda(\theta, \phi) = \frac{dE_\lambda}{dS \, dt \, d\lambda \, d\omega} = \frac{dE_\lambda}{dA \cos(i) \, dt \, d\lambda \, d\omega} \quad (2.11)$$

Elle s'exprime en  $W.m^{-2}.sr^{-1}.(\mu m)^{-1}$ .

On peut également exprimer la luminance en terme de nombre d'onde  $\nu$ . Elle s'exprime alors en  $W.m^{-2}.sr^{-1}.(cm^{-1})^{-1}$  :

$$L_\nu d\nu = L_\lambda d\lambda \implies L_\nu = \lambda^2.L_\lambda = \nu^{-2}.L_\lambda \quad (2.12)$$

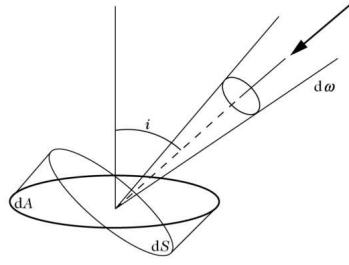


FIG. 2.7 – Propagation de la lumière suivant une direction  $\vec{s}$  (représentée par la flèche noire) dans un angle solide  $d\omega$  traversant un élément de surface  $dA$ . La surface élémentaire  $dS$  est perpendiculaire à  $\vec{s}$ .

### 2.3.1.2 La densité de flux

La densité de flux (ou plus simplement le flux) radiatif  $F$  représente la quantité d'énergie par unité de temps et de surface ( $W.m^{-2}$ ). La contribution de la luminance monochromatique  $L_\lambda(\vec{s})$  au flux à travers  $dA$  est  $L_\lambda(\vec{s}) \cos(i) d\omega$ . Le flux d'énergie radiative à travers une surface unité et par unité de temps s'écrit donc :

$$dF_\lambda = \int_{4\pi} L_\lambda(\vec{s}) \cos i d\omega \quad (2.13)$$

et par conséquent, la densité de flux s'écrit :

$$F = \int_0^\infty \int_{4\pi} L_\lambda(\vec{s}) \cos i d\omega d\lambda \quad (2.14)$$

## 2.3.2 L'équation de transfert

### 2.3.2.1 Cas général

On considère la luminance monochromatique à la longueur d'onde  $\lambda$  se propageant dans l'angle solide  $d\omega$  autour de la direction  $\vec{s}$ . On considère également un élément de volume cylindrique axé sur le vecteur  $\vec{s}$  de longueur  $dl$  et de surface à la base  $dS$ . On note  $L_\lambda(l, \vec{s})$  la luminance à l'entrée du cylindre et  $L_\lambda(l + dl, \vec{s})$  celle à la sortie. A la sortie du cylindre, la luminance a été modifiée par un ou plusieurs des 3 phénomènes suivants :

- Les photons issus de  $\vec{s}$  ont soit été absorbés dans le milieu, soit ils ont été diffusés dans une direction différente. Ce phénomène contribue donc à l'extinction du rayonnement incident. Le terme correspondant s'écrit  $L_\lambda(l, \vec{s}) + dL_\lambda^{ext}$  avec  $dL_\lambda^{ext}$  négatif.
- Des photons peuvent avoir été émis à l'intérieur du cylindre ( $dL_\lambda^{em}$ ).
- Des photons incidents dans l'élément de volume provenant d'une autre direction ( $\vec{s}_i$ ) peuvent être diffusés dans la direction  $\vec{s}$  ( $dL_\lambda^{dif}$ ).

A la sortie du cylindre, le bilan radiatif s'écrit donc :

$$L_\lambda(l + dl, \vec{s}) = L_\lambda(l, \vec{s}) + dL_\lambda^{ext} + dL_\lambda^{em} + dL_\lambda^{dif} \quad (2.15)$$

On définit la fonction source comme étant représentative des termes de gains dans l'équation 2.15 :

$$J_\lambda(l, \vec{s}) = \frac{dL_\lambda^{dif}}{dl} + \frac{dL_\lambda^{em}}{dl} \quad (2.16)$$

L'équation 2.15 se réécrit alors :

$$dL_\lambda(l, \vec{s}) = L_\lambda(l + dl, \vec{s}) - L_\lambda(l, \vec{s}) = dL_\lambda^{ext} + J_\lambda(l, \vec{s})dl \quad (2.17)$$

### 2.3.2.2 Extinction seule : loi de Beer-Lambert

Dans le cadre des mesures d'occultation solaire (cf section 3), les termes de gain n'interviennent plus. En effet, l'émission dans le domaine solaire est négligeable. De plus, l'angle de vue d'un instrument effectuant des mesures par occultation solaire étant souvent très faible (inférieur à quelques minutes d'arc), le terme de gain par diffusion est aussi négligé. Dans ces conditions, seule l'extinction du rayonnement intervient. Deux processus contribuent à l'extinction du rayonnement, il s'agit de l'absorption et de la diffusion. Ces deux processus étant linéaires et indépendants, on peut écrire :

$$dL_\lambda^{ext} = -L_\lambda(l, \vec{s}) k_\lambda^{ext} dl \quad (2.18)$$

où  $k_\lambda^{ext} = k_\lambda^{abs} + k_\lambda^{dif}$ .  $k_\lambda^{ext}$  est le coefficient d'extinction,  $k_\lambda^{abs}$  le coefficient d'absorption et  $k_\lambda^{dif}$  le coefficient de diffusion exprimés en  $m^{-1}$ . Ils sont proportionnels à la densité de particules absorbantes ( $n_{abs}$ ) ou diffusantes ( $n_{dif}$ ) par unité de volume :

$$k_\lambda^{abs} = n_{abs} \sigma_\lambda^{abs} \quad (2.19)$$

$$k_\lambda^{dif} = n_{dif} \sigma_\lambda^{dif} \quad (2.20)$$

$\sigma_\lambda^{abs}$  et  $\sigma_\lambda^{dif}$  ont la dimension d'une surface, ce sont respectivement les sections efficaces d'absorption et de diffusion.

Si on suppose qu'il n'y a pas de processus d'apport de photons extérieurs, le terme source de l'équation 2.17 devient nul et l'équation de transfert se simplifie et donne la loi de Beer-Lambert :

$$dL_\lambda(l, \vec{s}) = -L_\lambda(l, \vec{s}) k_\lambda^{ext} dl \quad (2.21)$$

L'intégration sur un trajet  $[l_0; l_1]$  sur lequel  $k_\lambda^{ext}$  est constant avec  $l_0 = 0$  et  $l_1 = x$  donne alors :

$$L_\lambda(x, \vec{s}) = L_\lambda(0, \vec{s}) \exp(-k_\lambda^{ext} x) \quad (2.22)$$

Cette expression constitue la loi exponentielle de Beer-Lambert. On définit alors l'épaisseur optique comme  $\delta_\lambda$  :

$$\delta_\lambda = k_\lambda^{ext} x \quad (2.23)$$

La transmission monochromatique  $\tau_\lambda$  s'écrit :

$$\tau_\lambda = \frac{L_\lambda(x, \vec{s})}{L_\lambda(0, \vec{s})} = e^{-\delta_\lambda} \quad (2.24)$$

Les 2 processus de pertes par diffusion et par absorption sont en compétition. On caractérise leur importance l'un par rapport à l'autre par la notion d'albédo de diffusion simple :

$$\omega_\lambda = \frac{k_\lambda^{dif}}{k_\lambda^{ext}} \quad (2.25)$$

Si  $\omega_\lambda = 0$  le milieu sera absorbant et si  $\omega_\lambda = 1$ , le milieu sera entièrement diffusant.

### 2.3.3 La diffusion

On distingue différents types de diffusion selon la taille des cibles par rapport à la longueur d'onde ( $\lambda$ ) de la radiation incidente :

- taille  $\ll \lambda$  : c'est le domaine de la diffusion Rayleigh, elle concerne la diffusion par les molécules (dimension de l'ordre de  $10^{-10}$  nm) du rayonnement visible. La dépendance spectrale de la diffusion Rayleigh est en  $\lambda^{-4}$ . Ainsi, le rayonnement de courte longueur est plus diffusé par les molécules que le rayonnement de grandes longueurs d'onde.
- taille  $\simeq \lambda$  : c'est le cas des aérosols dont le spectre de taille s'étend approximativement de 100 nm à 10  $\mu m$ . Dans le cas d'aérosol sphérique, la diffusion est décrite par la théorie de Mie [Mie, 1908, Van de Hulst, 1957].
- taille  $\gg \lambda$  : la diffusion est ici expliquée par la théorie de l'optique géométrique. Elle concerne les gouttes d'eau nuageuses de quelques microns ou les cristaux de glace de quelques dizaines de microns. Cette dernière théorie ne sera pas présentée ici.

#### 2.3.3.1 La diffusion moléculaire

La diffusion moléculaire fut découverte par Lord Rayleigh en 1871. C'est une diffusion élastique (l'onde diffusée a la même longueur d'onde que celle de l'onde incidente). Le champ électromagnétique incident va déformer le nuage électronique des atomes si bien que le barycentre des charges négatives va osciller autour du noyau créant ainsi un dipôle oscillant qui va réémettre des photons à la même longueur d'onde.

Le coefficient de diffusion Rayleigh s'écrit :

$$k_{ray}^{diff}(\lambda) = N \sigma_{ray}^{diff} \quad (2.26)$$

avec  $\sigma_{ray}^{diff}$  la section efficace de diffusion moléculaire et N la densité de particules. N est défini selon la loi des gaz parfaits :

$$N = \frac{\mathcal{N}_A}{R} \frac{P}{T} \quad (2.27)$$

Avec :

- P la pression (en Pa),
- T la température (en K),
- $\mathcal{N}_A$  le nombre d'Avogadro ( $\mathcal{N}_A = 6.022 \cdot 10^{23}$  mol $^{-1}$ )
- R, la constante des gaz parfaits ( $R = 8.314$  J.K $^{-1}$ .mol $^{-1}$ ).

La section efficace de diffusion moléculaire se calcule ainsi [Lenoble, 1993] :

$$\sigma_{ray}^{diff}(\lambda) = \frac{24\pi^3}{\lambda^4 N_s^2} \left( \frac{m_s^2 - 1}{m_s^2 + 2} \right)^2 \left( \frac{6 + 3d}{6 - 7d} \right) \quad (2.28)$$

avec :

- $N_s$  le nombre de molécules par unité de volume dans les conditions standards de pression et de température ( $P_s = 1013.25$  hPa et  $T_s = 288.15$  K). Le calcul donne  $N_s = 2.5474 \cdot 10^{19}$  cm $^{-3}$ .

- d le facteur de dépolarisation. Il présente une légère dépendance spectrale :

$$d = d_0 + \left(\frac{10^7}{\lambda}\right)^2 \left(d_1 + \left(\frac{10^7}{\lambda}\right)^2 d_2\right) \quad (2.29)$$

avec  $\lambda$  en nm,  $d_0 = 0.0271323$ ,  $d_1 = 3.07929 \cdot 10^{-12}$  et  $d_2 = 1.62964 \cdot 10^{-21}$ . Le facteur de correction de la dépolarisation apparaissant dans l'équation 2.28 défini par :

$$F_k = \frac{6 + 3d}{6 - 7d} \quad (2.30)$$

est également appelé facteur de King. Il varie de 1.0517 (385 nm) à 1.0469 (1545 nm) [Bodhaine et al., 1999].

- $m_s$  l'indice de réfraction de l'air dans les conditions standards. Plusieurs formulations existent pour le calcul de cette indice  $m_s$  :

1. Edlen [1966] :

$$m_s = 1 + \left(8342.13 + \frac{2406000}{130 - \lambda^{-2}} + \frac{15997}{38.9 - \lambda^{-2}}\right) \cdot 10^{-8} \quad (2.31)$$

2. Bucholtz [1995] :

$$m_s = 1 + \left(6432.8 + \frac{2949810}{146 - \lambda^{-2}} + \frac{25540}{41 - \lambda^{-2}}\right) \cdot 10^{-8} \quad (2.32)$$

3. Bodhaine et al. [1999] :

$$m_s = 1 + \left(8060.77 + \frac{2481070}{132.274 - \lambda^{-2}} + \frac{17456.3}{39.32957 - \lambda^{-2}}\right) \cdot 10^{-8} \quad (2.33)$$

où la longueur d'onde est en  $\mu m$ . Nous verrons dans la section 4.1.2.2 que ces différentes formulations ne conduisent qu'à de faibles différences. Le calcul de l'épaisseur optique de diffusion montre une dépendance approximative en  $\lambda^{-4}$ . Le rayonnement de courte longueur d'onde est donc plus sensible à la diffusion par les molécules.

### 2.3.3.2 La diffusion des particules sphériques

La télédétection des aérosols est basée sur leurs propriétés optiques de diffusion décrites par la théorie de Mie dans le cas de particules sphériques. Elle nécessite la connaissance de la composition des particules, de leur état physique et de leur distribution en taille.

**Particule unique** Pour une particule sphérique unique, la théorie de Mie permet de calculer la section efficace de diffusion  $\sigma_{dif}$  par le biais du calcul du facteur d'efficacité de diffusion  $Q_{dif}$ . Cette théorie décrit également l'absorption des aérosols et par conséquent l'extinction. On a donc :

$$Q^{ext} = Q^{dif} + Q^{abs} \quad (2.34)$$

$$\text{et } \sigma_p^{ext} = \sigma_p^{dif} + \sigma_p^{abs} \quad (2.35)$$



La section efficace d'extinction pour une particule unique à une longueur d'onde  $\lambda$  est donnée par :

$$\sigma_p^{ext}(r, \lambda, m) = \pi r^2 Q^{ext}(r, \lambda, m) \quad (2.36)$$

où  $r$  est le rayon de la particule et  $m$  son indice complexe de réfraction ( $m = m_r + i m_i$ ,  $m_r$  et  $m_i$  étant respectivement la partie réelle et la partie imaginaire).

La théorie de Mie se base sur la théorie ondulatoire de la lumière. L'onde incidente  $y$  est décomposée en harmoniques sphériques et l'étude des conditions de passage aux interfaces entre la particule et son environnement déterminent les caractéristiques physiques de l'onde diffusée. Il en découle, après calcul que nous ne détaillerons pas ici (pour plus de détail se référer à Van de Hulst [1957]), les facteurs d'efficacité.

**Population de particules** Une population de particules de concentration totale  $\mathcal{N}$  est caractérisée par sa distribution en taille normalisée  $n(r)$  (cf section 2.1.2.4). A l'intérieur d'un volume unité, les particules sont réparties aléatoirement et séparées par des distances plusieurs fois supérieures aux longueurs d'onde visible. Il en résulte que les phases des ondes diffusées par chacune des particules prises individuellement sont indépendantes les unes des autres. On peut donc en conclure que la somme des contributions individuelles correspond à l'intensité totale diffusée. On pondère alors le facteur d'efficacité pour un rayon  $r$  par la distribution en taille  $n(r)$  et on intègre par rapport à  $r$  pour obtenir le coefficient d'extinction à la longueur d'onde  $\lambda$  [Lenoble, 1993] :

$$k^{ext} = \mathcal{N} \int_0^\infty \pi r^2 Q^{ext}(r, \lambda, m) n(r) dr \quad (2.37)$$

Le coefficient de diffusion d'une population de particules est calculé de la même façon :

$$k^{dif} = \mathcal{N} \int_0^\infty \pi r^2 Q^{dif}(r, \lambda, m) n(r) dr \quad (2.38)$$

### 2.3.4 L'absorption gazeuse

Cette section est consacrée à l'étude de l'absorption gazeuse. En effet, les codes d'inversion utilisés dans cette thèse incluent des calculs d'épaisseurs optiques d'absorption gazeuse, notamment celle du dioxyde de carbone dans le proche infrarouge (voir section 4.1.1.2).

#### 2.3.4.1 Remarques préliminaires

L'absorption de rayonnement par une molécule correspond à une transition entre 2 niveaux d'énergie. L'énergie totale d'une molécule s'écrit sous la forme :

$$E = E_c + E_e + E_r + E_v \quad (2.39)$$

avec  $E_c$  l'énergie cinétique,  $E_e$  l'énergie électronique,  $E_r$  l'énergie de rotation et  $E_v$  l'énergie de vibration. L'énergie cinétique n'est pas quantifiée, les 3 autres le sont.

Chaque molécule présente donc un spectre de raies correspondant à différents niveaux d'énergie. Lorsque la molécule est dans son niveau d'énergie le plus stable, on parle

d'état fondamental. Une onde incidente de longueur d'onde  $\lambda$  entrant en interaction avec une molécule est susceptible d'en modifier la configuration énergétique selon 2 processus : l'émission stimulée et l'absorption. L'émission stimulée ne sera pas discutée dans cette étude. L'absorption correspond à la transition vers un niveau d'énergie supérieur suivi de la ré-émission de photons. Il existe certaines règles dites règles de sélection autorisant la transition d'un niveau d'énergie à un autre.

- Les transitions entre 2 niveaux d'énergie non quantifiés, ionisation ou dissociation de la molécule, entraînent un continuum d'absorption. De telles transitions requièrent des énergies importantes correspondants à l'ultra-violet.
- Les transitions concernant les niveaux d'énergies électroniques quantifiés d'une molécule nécessitent une grande énergie radiative. Elles sont principalement dues aux rayonnements UV et visible.
- Les transitions de rotation et/ou de vibration requièrent moins d'énergie : le rayonnement infrarouge peut provoquer ce type de transition.

Dans l'atmosphère, les rayonnements solaire et tellurique sont absorbés par les différents gaz mais aussi par les aérosols. L'absorption par les aérosols est décrite par la théorie de Mie (cf 2.3.3.2). Le rayonnement solaire s'étend de l'ultra-violet jusqu'au proche infrarouge. Le rayonnement UV est fortement absorbé par l'ozone et l'oxygène jusqu'à 310 nm. Entre 350 et 800 nm, le rayonnement visible est très peu absorbé par l'atmosphère. Seuls certaines espèces y absorbent ( $O_3$ ,  $NO_2$  notamment). Les sections efficaces d'absorptions moléculaires (cf équation 2.19) sont déterminées en laboratoire par les spectroscopistes dans différentes conditions simulant ainsi les conditions réelles de température et de pression existant dans l'atmosphère. Elles sont nécessaires à la détermination précise des profils verticaux des concentrations des différentes espèces gazeuses atmosphériques.

Dans la suite sont exposées des notions nécessaires pour la compréhension des modèles utilisées dans différents codes de transfert radiatif.

### 2.3.4.2 Les raies d'absorption

Une raie d'absorption au nombre d'onde  $\nu_0$  présente une certaine largeur spectrale. Le coefficient d'absorption  $k(\nu)$  d'une raie centrée en  $\nu_0$  s'écrit ainsi :

$$k(\nu) = S g(\nu - \nu_0) \quad (2.40)$$

où  $S$  est l'intensité de la raie et la fonction  $g$  est le facteur de forme de la raie. On définit la demi-largeur à mi-hauteur  $\alpha$  de la façon suivante :

$$k(\nu_0 \pm \alpha) = \frac{1}{2} k(\nu_0) \quad (2.41)$$

Les raisons de l'élargissement des raies d'absorption sont multiples :

- Une largeur naturelle due au fait que les états excités ont une durée de vie limitée et donc le niveau d'énergie présente une incertitude (principe d'Heisenberg) et par conséquent le nombre d'onde de la transition a également une incertitude. On démontre qu'un profil lorentzien représente cet élargissement de la raie.
- Un élargissement collisionnel : les niveaux d'énergie associés à une transition sont modifiés par les collisions entre 2 molécules. Par conséquent, le nombre d'onde de la transition  $\nu_0$  varie. Là encore, le profil d'une raie élargie par collision est lorentzien. Cette cause d'élargissement est prépondérante dans la troposphère.

- L'élargissement Doppler : le nombre d'onde varie par effet Doppler du fait du déplacement de la molécule absorbante suivant la direction de propagation du rayonnement.

Quand les élargissements par collision et par effet Doppler agissent à part égales, la forme de la raie est représentée par le produit de convolution d'un profil Doppler et d'un profil de Lorentz, c'est le profil de Voigt. C'est le cas dans la haute atmosphère (au-dessus de 20 km approximativement) alors que dans la basse atmosphère, la forme des raies est mieux représentée par le profil de Lorentz. La figure 2.8 montre des profils lorentzien, Doppler et Voigt.

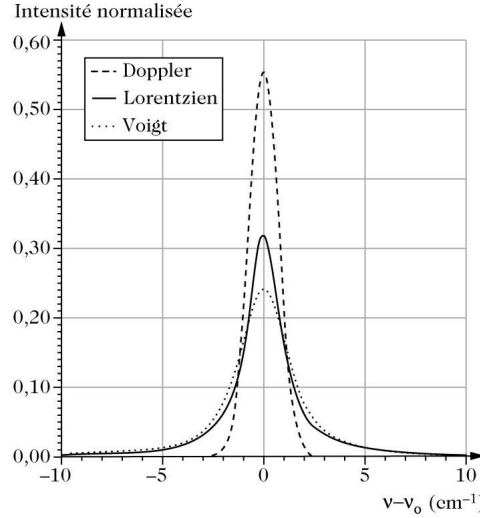


FIG. 2.8 – Profils lorentzien, Doppler et de Voigt.

#### Définition de la largeur équivalente d'une raie :

D'un point de vue général, la transmission moyenne  $\tau$  dans un intervalle de fréquence  $\Delta\nu$  contenant plusieurs raies, le long d'un trajet ds s'écrit :

$$\tau = \frac{1}{\Delta\nu} \int_{\Delta\nu} \left[ \exp \left( - \sum_i \int_{trajet} k_i(\nu, z) da \right) \right] d\nu \quad (2.42)$$

où  $k_i(\nu, z)$  est le coefficient d'absorption de chaque raie dans l'intervalle de fréquence et  $da$  est l'abondance de gaz absorbant (en cm.atm) le long du trajet ds. L'abondance d'un gaz correspond à l'épaisseur qu'aurait une couche si on ramenait la colonne contenant ce gaz à une pression égale à 1 atm et une température de 0°C.

Dans le cas d'une atmosphère où la température et la pression sont constantes, la transmission moyenne  $\tau_h$  dans un intervalle de fréquence  $\Delta\nu$  contenant plusieurs raies s'écrit :

$$\tau_h = \frac{1}{\Delta\nu} \int_{\Delta\nu} [\exp(-a k(\nu))] d\nu \quad (2.43)$$

où  $k(\nu) = \sum_j k_j(\nu)$  avec  $k_j$  le coefficient d'absorption de la raie j. L'absorption moyenne sur ce même trajet s'écrit alors :

$$A_h = \frac{1}{\Delta\nu} \int_{\Delta\nu} [1 - \exp(-a k(\nu))] d\nu \quad (2.44)$$

Si on considère une seule raie centrée en  $\nu_0$ , on définit la largeur équivalente  $W$  de la raie comme :

$$W = \int_0^{+\infty} (1 - \exp(-a S g(\nu - \nu_0))) d\nu \quad (2.45)$$

La largeur équivalente correspond à une raie hypothétique de largeur  $W$  et de forme rectangulaire qui absorberait la même quantité de rayonnement que la raie 'vraie'.

### 2.3.4.3 Modèles de bande pour un trajet homogène

Généralement, les bandes spectrales contiennent un grand nombre de raies. Pour un trajet homogène (à température et pression constante) contenant  $a$  molécules absorbantes dans la bande spectrale considérée, l'absorption moyenne  $A_h$  dans l'intervalle de fréquence  $\Delta\nu$  est calculée selon l'équation 2.44.

**Si on considère que les raies ne se recouvrent pas** dans l'intervalle de fréquence  $\Delta\nu$  (c'est à dire si l'espacement des raies est grand par rapport à leur largeur) alors l'absorption moyenne peut s'écrire :

$$A = \frac{1}{\Delta\nu} \sum_j \int_{\Delta\nu_j} [1 - \exp(-a k_j(\nu))] d\nu \quad (2.46)$$

$$A = \sum_j \frac{W_j}{\Delta\nu} = \frac{\overline{W}}{\delta} \quad (2.47)$$

où  $\overline{W}$  correspond à la largeur équivalente moyenne et  $\delta$  l'espacement moyen des raies dans l'intervalle  $\Delta\nu$  (contenant  $N$  raies) :

$$\overline{W} = \frac{\sum_j W_j}{N} \quad \delta = \frac{\Delta\nu}{N} \quad (2.48)$$

La transmission moyenne s'écrit alors :

$$\tau_h = 1 - \frac{\overline{W}}{\delta} \quad (2.49)$$

Dans la grande majorité des cas, les raies se recouvrent. Deux modèles différents permettent de prendre en considération **ce recouvrement des raies** :

#### 1. Le modèle en bande régulière

Les raies d'absorption sont considérées identiques (même forme et même intensité), équidistantes (intervalle  $\delta$ ) et en nombre illimité dans la bande [Elsasser, 1938]. Ce modèle peut s'appliquer dans le cas où on peut discerner dans le spectre d'absorption certaines régularités et décomposer ainsi le problème en plusieurs systèmes réguliers.

#### 2. Le modèle statistique.

On suppose dans un premier temps  $N$  raies séparées d'une distance moyenne  $\delta$  réparties aléatoirement dans l'intervalle  $\Delta\nu$  ( $\Delta\nu = N\delta$ ). On calcule la transmission moyenne de ces  $N$  raies puis on en étudie la limite quand  $N$  tend vers l'infini [Goody, 1952]. Le coefficient d'absorption de chaque raie dont on suppose les formes

identiques s'écrit  $k_j(\nu - \nu_j) = S_j g(\nu - \nu_j)$ . Il vient, tous calculs faits, pour l'expression de la transmission moyenne :

$$\tau_h = \exp\left(-\frac{\overline{W}}{\delta}\right) \quad (2.50)$$

avec  $\overline{W}$ , la largeur équivalente moyenne qui s'écrit :

$$\overline{W} = \int_0^{+\infty} W(S')P(S')dS' \quad (2.51)$$

où  $W(S')$  est la largeur équivalente de la raie d'intensité  $S'$  et  $P(S')dS'$  est la probabilité qu'une raie ait une intensité comprise entre  $S'$  et  $S' + dS'$ . Plusieurs formes mathématiques ont été proposées pour  $P$  permettant le calcul de la largeur équivalente moyenne.

#### 2.3.4.4 Modèles de bande pour un trajet inhomogène

Un trajet atmosphérique réel est évidemment inhomogène. Le coefficient d'absorption et la concentration en gaz absorbant varie en fonction de la pression et de la température le long du trajet. La transmission moyenne  $\tau_{inh}$  dans une bande  $\Delta\nu$  sur un trajet inhomogène  $\Delta z$  se calcule selon l'équation 2.42. Le calcul consiste à trouver un trajet homogène équivalent (à la pression  $P_{eq}$ , la température  $T_{eq}$  et contenant  $a_{eq}$  molécules absorbantes) qui absorberait de la même façon que le trajet réel inhomogène. Différentes approximations ont été proposées pour mener ce calcul :

**L'approximation de Curtis-Godson** [Curtis, 1952, Godson, 1955] :

On fixe la température équivalente en la choisissant dans la gamme de température observée habituellement dans le cadre de l'étude effectuée et on calcule l'abondance et la pression équivalente selon :

$$a_{eq} = \int_{trajet} \frac{\sum_i S_i(T)}{\sum_i S_i(T_{eq})} da \quad (2.52)$$

$$P_{eq} = \frac{\int_{trajet} \frac{\Psi(T)}{\Psi(T_{eq})} P da}{a_{eq}} \quad (2.53)$$

avec  $\Psi(T) = \left(\sum_i \sqrt{S_i(T) \alpha_i(T)}\right)^2$  et  $\alpha_i$  la demi-largeur à mi-hauteur de la raie  $i$ . Si on néglige les variations des  $S_i$  et des  $\alpha_i$  avec la température, il vient :

$$a_{eq} = \int_{trajet} da = a \quad (2.54)$$

et

$$P_{eq} = \frac{\int_{trajet} P da}{a_{eq}} \quad (2.55)$$

Cette approximation est celle utilisée pour mener à bien le calcul des transmissions atmosphériques dans le modèle MODTRAN (versions 1 à 4) (MODerate resolution TRANsmittance) [Anderson et al., 1995].

**La méthode EGA** (Emissivity Growth Approximation) :

Cette méthode a été mise en place par Weinreb and Neuendorffer [1973] puis reformulée pour les calculs d'émissivité par Gordley and Russell III [1981]. Cette méthode nécessite préalablement le calcul de tables d'absorptions sur des chemins optiques homogènes, fonctions de la température  $T$ , de la pression  $P$  et de l'abondance en gaz absorbant  $a$ . Cette table couvre l'ensemble des conditions atmosphériques possibles. Considérons par exemple une ligne de visée traversant 2 couches homogènes  $(T_1, P_1, a_1)$  et  $(T_2, P_2, a_2)$ . La transmission totale  $\tau_{12}$  se calcule ainsi :

$$\tau_{12} = (1 - A_{12}) = [1 - A(T_1, P_1, a_1)] * [1 - A(T_2, P_2, a_2)] \quad (2.56)$$

où  $A_{12}$  est l'absorption totale le long de la ligne de visée. La méthode EGA cherche à déterminer à l'aide de la table précalculée une pseudo-concentration en gaz absorbant  $a_2^*$  telle que :

$$\tau_{12} = (1 - A_{12}) = [1 - A(T_2, P_2, a_2^* + a_2)] \quad (2.57)$$

Ainsi, de proche en proche, le trajet est "homogénéisé". Cette méthode est celle utilisée par le LaRC (LAngley Research Center) pour estimer la contribution de l'absorption du  $\text{CO}_2$  dans le canal à 1545 nm de SAGE III (voir section 4.1.1.2).

**2.3.4.5 Les fonctions k-corrélées**

La méthode des fonctions k-corrélées a été développée par Lacis and Oinas [1991]. Elle est notamment implémentée dans le modèle MODTRAN version 5 utilisé par l'algorithme d'inversion des transmissions de SAGE III développé au LOA. Cette méthode est basée sur la transformation d'intégrale sur la fréquence en intégrale sur les coefficients d'absorption  $k$ . Si on suppose ces coefficients d'absorption indépendants des variations de température et de pression le long d'un trajet atmosphérique, si on nomme  $f(k)$  la fonction de distribution de  $k$  sur l'intervalle  $\Delta\nu$  et  $k_{min}$  ( $=0$ ) et  $k_{max}$  ( $=\infty$ ) les valeurs minimum et maximum de  $k$ , alors la transmission spectrale peut s'écrire :

$$\tau(\nu, a) = \int_{\Delta\nu} \exp(-k_\nu a) \frac{d\nu}{\Delta\nu} = \int_0^\infty \exp(-k a) f(k) dk \quad (2.58)$$

La transmission moyenne s'exprime ainsi comme étant la transformée de Laplace de la fonction de distribution  $f$ . Cette fonction peut être déterminée en utilisant le spectre du coefficient d'absorption issu d'un modèle raie par raie. L'intervalle  $\Delta\nu$  est découpé en  $M$  intervalle à l'intérieur desquels le coefficient d'absorption  $k$  varie de façon monotone entre  $k_i$  et  $k_i + dk_i$ . La fonction  $f$  peut ainsi s'écrire :

$$f(k) = \sum_{i=1}^M \left| \frac{d\nu_i}{dk} \right| W(k_i, k_i + dk_i) \quad (2.59)$$

où la fonction  $W$  vaut 0 quel que soit  $k$  sauf si  $k$  est compris entre  $k_i$  et  $k_i + dk_i$  auquel cas,  $W$  prend la valeur 1. Nous définissons ensuite la fonction de distribution cumulée  $g$  par l'expression suivante :

$$g(k) = \int_0^k f(k) dk \quad (2.60)$$

Par définition, la fonction  $g$ , définie sur  $[0, 1]$ , est monotone et croissante par rapport à  $k$ , donc la fonction inverse  $k(g)$  est aussi monotone et croissante par rapport à  $g$ . L'intégration en  $k$  peut être ainsi transformée en intégration sur  $g$  et, par quadrature de Gauss sur  $N$  points, en une somme finie :

$$\tau(\nu, a) = \int_0^1 \exp(-k(g)a) dg \simeq \sum_{j=1}^N \exp(-k(g_j)a) \Delta g_j \quad (2.61)$$

Seuls quelques points ( $N$  pas trop grand) suffisent pour obtenir un haut degré de précision dans le calcul de la transmission [Lacis and Oinas, 1991].

Cette méthode s'applique également dans le cas d'une atmosphère inhomogène. Il faut alors discuter de l'équivalence entre les deux équations suivantes :

$$\tau(\nu, a) = \int_{\Delta\nu} \exp\left(-\int_{\text{trajet}} k_\nu da\right) \frac{d\nu}{\Delta\nu} \simeq \int_0^1 \exp\left(-\int_{\text{trajet}} k(g) da\right) dg \quad (2.62)$$

La méthode qui suppose cette équivalence vérifiée est la méthode dite CKD (Correlated K-Distribution) [Lacis and Oinas, 1991]. L'équivalence est vérifiée si on considère une raie unique dans l'intervalle  $\Delta\nu$  ou si on considère des raies périodiquement espacées dans cet intervalle ou dans l'approximation des raies faibles ou fortes (en intensité). L'inhomogénéité de l'atmosphère est prise en compte en supposant une corrélation simple entre les distributions des coefficients d'absorption à différentes températures et pressions de telle sorte que la transmission peut s'écrire :

$$\tau(\nu, a) = \int_0^1 \exp\left[-\sum_i k_i(g)\Delta a_i\right] dg \quad (2.63)$$

Lacis and Oinas [1991] ont montré que les résultats de la méthode CKD diffèrent seulement de 1% par rapport aux résultats obtenus en calculant la transmission à l'aide d'un modèle raie par raie.

Dans le domaine visible et proche infrarouge, les principaux absorbants utilisés dans les algorithmes d'inversion de SAGE III (cf 4.1) sont l'ozone, le dioxyde d'azote et le dioxyde de carbone. La vapeur d'eau absorbe également dans cette gamme de longueur d'onde (elle n'est pas utilisée dans les algorithmes d'inversion de SAGE III). Le calcul de la transmissions du  $\text{CO}_2$  nécessite l'utilisation de l'un des modèles décrits ci-dessous. Les sections efficaces d'absorption sont également requises. Nous détaillons dans les paragraphes suivants celles nécessaires à l'inversion des transmissions de l'instrument SAGE III.

#### 2.3.4.6 L'ozone

La principale bande d'absorption de l'ozone se situe dans l'ultra-violet, entre 240 et 340 nm avec un maximum situé à 250 nm : c'est la bande de Hartley-Huggins. L'ozone absorbe également dans le domaine visible, entre 410 et 750 nm, c'est la bande de Chappuis. Elle présente un maximum autour de 600 nm. Notons qu'il existe également une bande d'absorption de l'ozone autour de 800 nm mais son amplitude est relativement faible : c'est la bande de Wulf. Cette dernière est, pour l'heure, mal connue. L'ozone absorbe également dans l'infrarouge.

Plusieurs jeux de sections efficaces sont disponibles :

- celles de Burrows et al. [1999] couvrant un domaine spectral allant de 231 à 794 nm. Les sections efficaces ont été déterminées avec le spectromètre GOME (Global Ozone Monitoring Experiment) à différentes températures,
- celles de Voigt et al. [2001], déterminées entre 230 et 850 nm.
- celles de Bogumil et al. [2003] utilisant le spectromètre SCIAMACHY (SCanning Imaging Absorption spectroMeter for Atmospheric CHartographY). Elles couvrent les longueurs d'onde allant de 230 nm à 1070 nm.

Le tableau 2.4 ci-dessous résume ces différentes banques de données spectroscopiques.

Jeux de données	Longueur d'onde (nm)	pas (nm)	Température (K)
Burrows et al. [1999]	231 - 794	0.2 à 0.4	202, 221, 241, 273 et 293
Voigt et al. [2001]	238 - 850	0.027 à 0.36	203, 223, 246, 280 et 293
Bogumil et al. [2003]	230 - 1070	0.2 à 1.4	203, 223, 243, 273 et 293

TAB. 2.4 – Caractéristiques des différents jeux de sections efficaces de l'ozone.

La figure 2.9 présentent les sections efficaces issues de ces 3 banques de données dans les bandes de Hartley-Huggins (à gauche) et de Chappuis (à droite). Entre 240 et 310 nm (dans la bande de Hartley), les 3 jeux de sections efficaces sont semblables. Les sections efficaces de Burrows présentent d'importantes différences avec les deux autres vers 370 nm où elles sont fortement sous-estimées par rapport aux deux autres. Cependant, l'absorption de l'ozone à ces longueurs d'onde étant très faible, les sections efficaces sont difficiles à mesurer. Des différences apparaissent également au-delà de 700 nm, Burrows surestimant les deux autres jeux de sections efficaces.

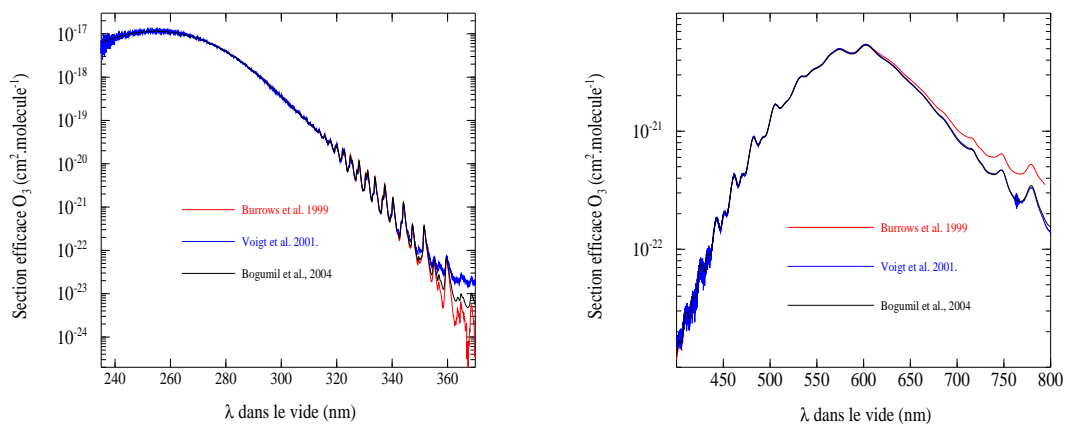


FIG. 2.9 – Sections efficaces de l'ozone dans les bandes de Hartley-Huggins (à gauche) et de Chappuis (à droite) d'après 3 banques de données différentes (voir texte) autour de 200 K.

Dans la bande de Hartley-Huggins, les sections efficaces de Bogumil et de Voigt présentent certaines différences. La figure 2.10 (à gauche) montre les différences relatives entre ces deux banques de données. Entre 240 et 310 nm, les différences relatives sont comprises entre -10 et 10%. Elles atteignent quasiment 20% autour de 340 nm. Entre



la bande de Hartley-Huggins et le début de celle de Chappuis (de 340 à 450 nm), les différences deviennent importantes du fait de la très faible absorption de l’ozone à ces longueurs d’onde. Entre 450 et 750 nm (bande de Chappuis), les différences entre les 2 jeux de données sont très faibles.

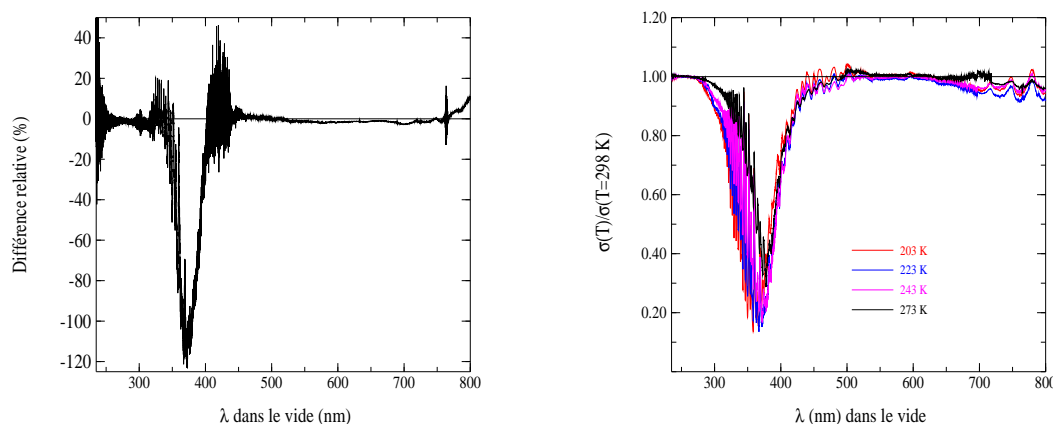


FIG. 2.10 – A gauche : différences relatives entre les sections efficaces de l’ozone des banques de données de Voigt et de Bogumil à 200 K. Les différences relatives sont exprimées par  $200 * (\text{Bogumil} - \text{Voigt}) / (\text{Bogumil} + \text{Voigt})$ . A droite : rapport des spectres d’absorption de l’ozone à 203, 223, 243 et 273 K à celui à 293 K mesurés par Bogumil et al. [2003].

La section efficace de l’ozone présente une dépendance avec la température. La figure 2.10 (à droite) montre les rapports entre les sections efficaces de Bogumil calculées à différentes températures (203, 223, 243 et 273 K) par rapport à celles calculées à 293 K. Il s’avère que dans la bande de Chappuis, les sections efficaces ne dépendent que très peu de la température (-1 à 1 %). A l’opposé, la dépendance en température est beaucoup plus importante dans la bande de Hartley-Huggins. Vers 370 nm, les différences avec les sections mesurées à 293 K atteignent presque 85%.

#### 2.3.4.7 Le dioxyde d’azote

Le dioxyde d’azote présente une forte absorption entre 290 et 600 nm avec un maximum autour de 400 nm. La principale difficulté dans la mesure du spectre d’absorption du  $\text{NO}_2$  réside dans le fait que celui-ci se transforme en  $\text{N}_2\text{O}_4$  par la réaction  $2\text{NO}_2 \rightarrow \text{N}_2\text{O}_4$ . Pour les longueurs d’onde inférieures à 400 nm, l’absorption de  $\text{N}_2\text{O}_4$  se combine ainsi à celle de  $\text{NO}_2$  rendant la mesure du spectre de  $\text{NO}_2$  plus difficile. Il faut alors déterminer le rapport de mélange de ces 2 espèces dans l’enceinte. Hurtmans et al. [1993] et Vandaele et al. [1998] estiment la précision des sections efficaces de  $\text{N}_2\text{O}_4$  de 2 à 25 %. Les expérimentateurs utilisent donc de faibles pressions afin de limiter la formation de  $\text{N}_2\text{O}_4$ .

Nous disposons de 3 jeux de données différents. Ils sont détaillés dans le tableau 2.5. La figure 2.11 présente ces trois jeux de sections efficaces entre 300 et 600 nm à 240 K. Les rapports entre chacune des sections efficaces à la moyenne des 3 sont présentés sur la figure 2.12 (à gauche). Les différences sont relativement faibles : elles atteignent seulement 5 - 6 % à 420 nm. Ces différences peuvent s’expliquer par les différences de protocoles

Jeux de données	Longueur d'onde (nm)	pas (nm)	Température (K)
Harder et al. [1997]	345 - 550	0.05	217, 230, 238 et 293
Burrows et al. [1998]	230 - 794	0.1	221, 241, 273 et 293
Bogumil et al. [2003]	230 - 930	0.1 à 0.2	203, 223, 243, 273 et 293

TAB. 2.5 – Caractéristiques des différents jeux de sections efficaces du dioxyde d'azote.

expérimentaux mises en place par les 3 équipes, par les méthodes de recalage en longueur d'onde utilisées.

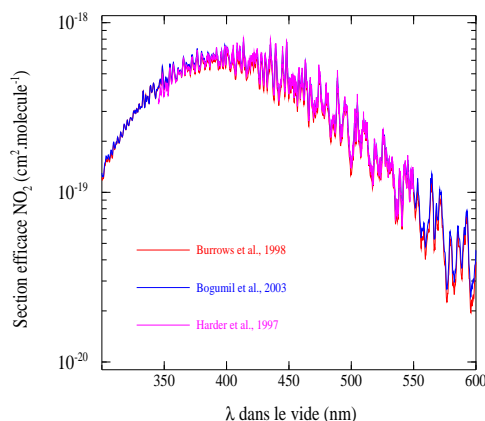


FIG. 2.11 – Sections efficaces du dioxyde d'azote d'après 3 banques de données différentes (cf 2.5) autour de 240 K.

Le spectre d'absorption du dioxyde d'azote présente une forte dépendance en température. La figure 2.12 (à droite) présente les rapports entre les sections efficaces de Bogumil mesurées à 203, 223, 243 et 273 K par rapport à celles mesurées à 293 K. Aux plus courtes longueurs d'onde, les différences sont très fortes : elles atteignent 50 % pour 273 K, et plus de 100 % à 203 et 243 K.

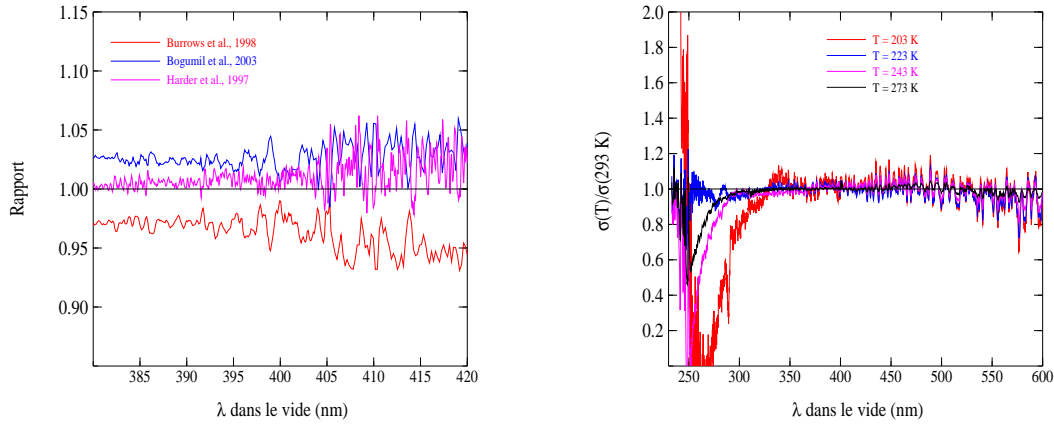


FIG. 2.12 – A gauche : rapport des trois sections efficaces de NO<sub>2</sub> à leur moyenne. A droite : rapport des spectres d'absorption du dioxyde d'azote à 203, 223, 243 et 273 K à celui à 293K mesurés par Bogumil et al. [2003].

#### 2.3.4.8 Le dioxyde de carbone

Le dioxyde de carbone absorbe le rayonnement électromagnétique sur de larges gammes de longueur d'onde. La figure 2.13 présente le spectre d'absorption du dioxyde de carbone de 0 à 25  $\mu\text{m}$ . Il s'agit ici d'un spectre de raies regroupé en différentes bandes. Il est issue de la banque de données spectroscopiques HITRAN 2004 (HIGH resolution TRANsmission molecular absorption database) [Rothman et al., 2005]. Les bandes d'absorption les plus intenses sont centrées sur 4  $\mu\text{m}$  et 15  $\mu\text{m}$ .

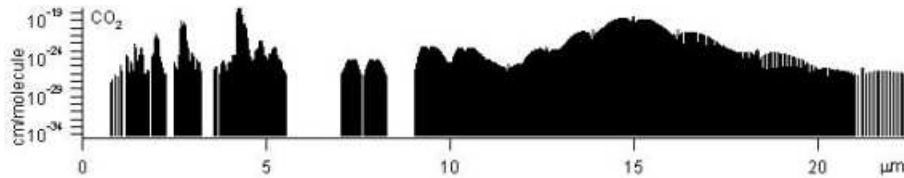


FIG. 2.13 – Spectre des raies d'absorption de CO<sub>2</sub> de 0 à 25  $\mu\text{m}$ . L'axe des ordonnées correspond à l'intensité des raies (en  $\text{cm}^{-1}/(\text{cm}^2.\text{molécule})$  soit en  $\text{cm}/\text{molécule}$ ). D'après Rothman et al., 2005.

En télédétection, l'absorption du CO<sub>2</sub> doit souvent être considérée. Comme nous le verrons dans les chapitres suivants, la restitution du coefficient d'extinction des aérosols à 1540 nm ne peut se faire qu'en tenant compte de l'absorption du dioxyde de carbone à cette longueur d'onde. La figure 2.14 montre la structure complexe du spectre d'absorption de CO<sub>2</sub> entre 1520 nm et 1550 nm. Comme le souligne Miller and Brown [2004], la détermination du spectre d'absorption du CO<sub>2</sub> à 1540 nm est rendue ardue par la présence de l'absorption de C<sub>2</sub>H<sub>2</sub> à ces mêmes longueurs d'onde. Il en résulte une erreur de positionnement de ces raies de l'ordre de  $2.1 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}$  (soit  $4.7 \cdot 10^{-4} \text{ nm}$ ).

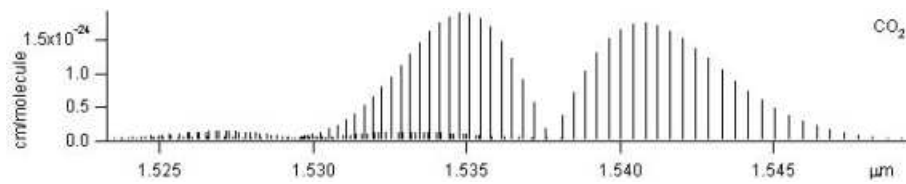


FIG. 2.14 – Identique à la figure 2.13 mais de 1.52 à 1.55  $\mu m$ . D'après Rothman et al., 2005.

#### 2.3.4.9 La vapeur d'eau

L'absorption de la vapeur d'eau dans les domaines visibles et proche infrarouge n'est pas prise en compte dans les algorithmes d'inversion de SAGE III du fait de la très faible teneur en vapeur d'eau de la stratosphère. Le spectre de la vapeur d'eau est constitué de raies et d'un continuum. L'origine de ce continuum généralement avancée est le recouvrement des ailes de raies lointaines.



## Chapitre 3

# Les expériences satellitaires d'occultation solaire

Les chapitres précédents ont souligné l'importance des aérosols stratosphériques sur l'équilibre radiatif et chimique de la stratosphère. D'un point de vue radiatif, ils génèrent un forçage radiatif négatif surtout en période de fort volcanisme. Les aérosols stratosphériques interviennent dans le cycle de destruction de l'ozone : ils servent de supports pour les réactions hétérogènes d'activation des espèces chlorées et bromées dans les régions de latitudes moyennes et polaires et de noyaux de condensation pour la formation des PSC, siège de ces mêmes réactions hétérogènes d'activation dans les régions polaires. La chimie des espèces azotées dans la stratosphère est également très importante. En effet, elle fait partie intégrante du cycle de destruction de l'ozone polaire par le biais des phénomènes d'activation des espèces chlorées, de dénoxyfication et de dénitrification (cf section 2.2.3.4).

La surveillance globale de la stratosphère est alors une nécessité. Avant l'avènement des instruments satellites, l'étude de la stratosphère se faisait notamment à l'aide de ballons stratosphériques et d'instruments au sol. Les mesures n'étaient alors que ponctuelles et ne pouvaient donc assurer cette surveillance globale. Dès le début des années 70, les progrès scientifiques et techniques dans le domaine de l'ingénierie spatiale permirent aux scientifiques d'installer à bord de plateformes satellites des instruments capables d'assurer cette surveillance globale en terme de couverture spatiale et temporelle. Les instruments sous ballons, ceux aéroportés ou ceux au sol restent toutefois nécessaires pour la validation des mesures satellites et des modèles et pour des études des processus d'échelles fines. De plus, les instruments sous ballons ont une résolution verticale très supérieure à celles des instruments satellites et sont plus précis dans la haute troposphère et la basse stratosphère.

Ce chapitre résume les grandes lignes d'une des méthodes satellitaires utilisée pour la télédétection des espèces stratosphériques : l'occultation solaire. Il fait également l'inventaire des instruments utilisant cette technique.

### 3.1 La méthode d'occultation solaire

Plusieurs stratégies de télédétection satellitaires furent mises en place par les scientifiques. La figure 3.1 présente les différents modes de visée de l'atmosphère envisageables.

Ils sont regroupés en 2 familles : les visées au nadir (dirigée directement vers la surface de la Terre) et les visées au limbe (visant la couronne atmosphérique). On distingue les instruments actifs (radar ou lidar) des instruments passifs (spectroradiomètre par exemple). Les instruments passifs nécessitent une source de rayonnement extérieur. Les visées nadir permettent d'accéder au contenu intégré de diverses espèces mais ne permettent pas la restitution de profils verticaux avec une bonne résolution. Ils sont cependant bien adaptés aux études de la troposphère. Les satellites visant au limbe peuvent eux fournir ces profils avec une meilleure résolution verticale.

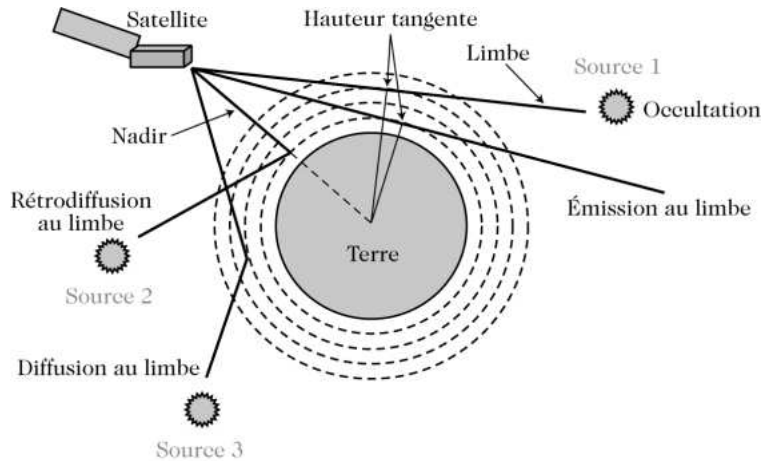


FIG. 3.1 – Stratégies d'observations satellitaires de l'atmosphère.

Les mesures au limbe sont des mesures passives. On distingue alors les satellites utilisant comme source de rayonnement, le soleil, la lune ou une étoile autre que le soleil (occultations solaire, lunaire ou stellaire) et de ceux utilisant le rayonnement diffusé par l'atmosphère (mesure au limbe). Nous ne détaillerons ici que la méthode d'occultation solaire. Les méthodes d'occultations lunaire et stellaire adoptent cependant le même type de géométrie.

La figure 3.2 montre la géométrie de l'occultation solaire. A chaque orbite, l'instrument acquiert deux séries de mesures, l'une correspondant à un coucher et l'autre à un lever de soleil. Hors de l'atmosphère, l'instrument mesure un éclairement de référence non atténué par l'atmosphère. L'instrument balaie ensuite les différentes couches atmosphériques du sommet de l'atmosphère à la surface terrestre pour un coucher et dans l'autre sens pour un lever. L'éclairement mesuré est atténué par les différentes composantes de l'atmosphère : par diffusions moléculaires et/ou par les aérosols et/ou par absorptions gazeuses. Le rapport entre les éclairements atténués par l'atmosphère et l'éclairement mesuré hors atmosphère fournit la transmission de l'atmosphère. La mesure effectuée hors atmosphère permet donc aux instruments d'occultation de s'auto-calibrer à chaque série de mesure. Ce spectre solaire hors atmosphère permet également un étalonnage en longueur d'onde grâce aux raies de Fraunhofer. Une mesure d'occultation est repérée verticalement par l'altitude tangente (notée hauteur tangente sur la figure 3.1 et  $Z_t$  sur la figure 3.2). Pour chaque ligne de visée, l'altitude tangente est définie comme étant la plus petite distance séparant la ligne de visée de la surface terrestre. Le point subtangent fournit alors la latitude et la longitude de la mesure.

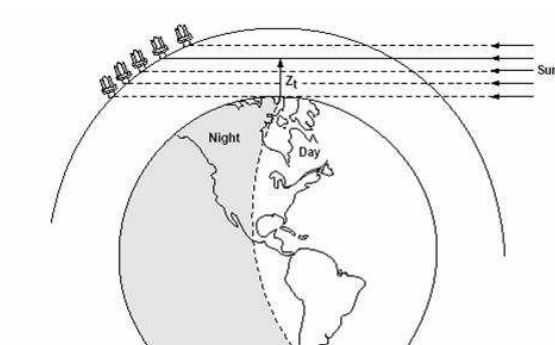


FIG. 3.2 – Géométrie d'observation des instruments à occultation solaire.

L'instrument acquiert donc 2 séries de mesures par orbite, une dans l'hémisphère nord et l'autre dans l'hémisphère sud. La couverture spatiale est donc limitée et dépend des paramètres orbitaux du satellite. D'un point de vue temporel, le nombre de mesures effectuées par jour dépend également des paramètres orbitaux : l'instrument SAGE III effectue en moyenne 30 occultations par jour.

La méthode d'occultation solaire est particulièrement pertinente aux hautes altitudes (au-dessus de la troposphère). En effet, les algorithmes d'inversion utilisés pour déterminer les profils verticaux requièrent tous l'hypothèse d'homogénéité sphérique. Si cette hypothèse paraît valable dans la stratosphère, elle est peu vérifiée dans la troposphère à cause de la présence d'éventuels nuages le long de la ligne de visée et d'importantes inhomogénéités des concentrations des espèces troposphériques. Ainsi, l'altitude tangente la plus petite d'une mesure correspond au sommet d'un nuage.

Les avantages de cette méthode sont :

- Une bonne résolution verticale (de 0.5 à quelques kilomètres),
- Un rapport signal sur bruit élevé,
- Une auto-calibration à chaque mesure,
- Le long chemin optique et le rapport signal sur bruit élevé permet les mesures de gaz ténus.

et les inconvénients :

- Faible fréquence des mesures,
- Méthode valable dans la troposphère en l'absence de nuage.

## 3.2 Les instruments d'occultation solaire

### 3.2.1 Les instruments SAGE

En 1975, la NASA lança son premier instrument utilisant l'occultation solaire à bord de la mission Apollo : SAM (Stratospheric Aerosol Measurement). Il n'effectua que 2 orbites avant de retourner sur Terre. Il s'agissait d'un photomètre solaire fonctionnant à une seule longueur d'onde (830 nm) et de dimension très petite (il tenait dans la main !) [Pepin and McCormick, 1976]. Cette expérience démontra la faisabilité de la méthode d'occultation solaire et engendra une série d'autres expériences de plus grande ampleur (SAM II et SAGE).



En 1978, la NASA envoya son premier instrument d'occultation solaire sur une plateforme satellite : SAM II. C'est un instrument opérant dans un seul canal spectral centré sur 1000 nm. Dans ce canal, seules l'extinction des aérosols et la diffusion moléculaire atténuent le rayonnement. Il fut opérationnel jusqu'en 1984 [McCormick et al., 1979].

Le premier instrument SAGE a été placé en orbite en 1979 et resta opérationnel pendant 33 mois. Cet instrument effectuait ses mesures à 4 longueurs d'onde (385, 450, 600 et 1000 nm). Il permettait également de déterminer les profils verticaux en ozone et en dioxyde d'azote [McCormick et al., 1979]. Sa couverture spatiale fut conçue de manière à compléter la couverture spatiale de SAM II.

SAGE II fut lancé à bord de la plateforme ERBS (Earth Radiation Budget Satellite) en 1984. C'est une version améliorée de SAGE avec 3 canaux supplémentaires à 448, 525 et 940 nm. Ce dernier canal permet à SAGE II de déterminer le contenu en vapeur d'eau stratosphérique [Mauldin, 1985]. Les profils verticaux de concentration en ozone, dioxyde d'azote ainsi que les profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols à 386, 452, 525 et 1020 nm sont également déduits des mesures de SAGE II. SAGE II utilise un miroir pour scanner le soleil verticalement par rapport à l'horizon terrestre. L'angle de vue instantané de SAGE II (IFOV - Instantaneous Field Of View) est de 0.5 minute d'arc (le soleil est vu sous un angle plusieurs fois supérieur : 32 minutes d'arc) cela correspond à une résolution verticale de l'ordre de 0.5 km. Les paramètres orbitaux de la plateforme ERBS (inclinaison de 55°) permettent une couverture spatiale allant de 72°sud à 72°nord. Ainsi, SAGE II observe des couchers ou des levers de soleil dans les 2 hémisphères. La mission SAGE II prit fin en août 2005.

Le tableau 3.1 résume les différentes caractéristiques des instruments de la série SAGE.

<b>Instrument</b>	SAM II	SAGE	SAGE II	SAGE III
<b>Plateforme</b>	Nimbus 7	AEM-2	ERBS	Meteor 3M
<b>altitude (km)</b>	955	600	610	1020
<b>inclinaison</b>	99.3°	55°	57°	99.53°
<b>couverture géographique</b>	64 - 80°N 64 - 80°S	79°N - 79°S	80°N - 80°S	50 - 80°N 30 - 50°S
<b>couverture temporelle</b>	1978 - 1984	1979 - 1981	1984 - 2005	2001 - 2005
<b>canaux (nm)</b>	1000	385, 450, 600, 1000	386, 448, 452, 525, 600, 940, 1020	289, 384, 441, 520, 591, 675, 755, 869, 1021, 1545

TAB. 3.1 – Instrument d'occultation solaire SAM II et SAGE.

Le spectroradiomètre SAGE III est le dernier des instruments de la série SAGE. Il bénéficie ainsi de l'expérience acquise au cours des missions précédentes. L'instrument SAGE III fut mis en orbite sur la plateforme russe Meteor-3M le 10 décembre 2001. L'orbite de Meteor-3M est héliosynchrone, inclinée de 99.53° avec un nœud ascendant à 9h (heure locale). L'altitude de l'orbite est de 1020 km. Cette configuration permet à SAGE III de couvrir des zones allant de 50 à 80° dans l'hémisphère nord et de 30 à 50°

dans l'hémisphère sud (cf figure 3.3). Vu de la plateforme, SAGE III observe un coucher de soleil dans l'hémisphère nord et un lever au sud. Cependant, les mesures effectuées au nord ou au sud peuvent correspondre localement à un lever ou un coucher de soleil. Comme son prédécesseur, SAGE III scanne le soleil dans la direction perpendiculaire à l'horizon terrestre. La couverture spectrale a été élargie par rapport à ses prédécesseurs, elle s'étend de 285 à 1040 nm avec en plus, une photodiode infrarouge centrée à 1545 nm.

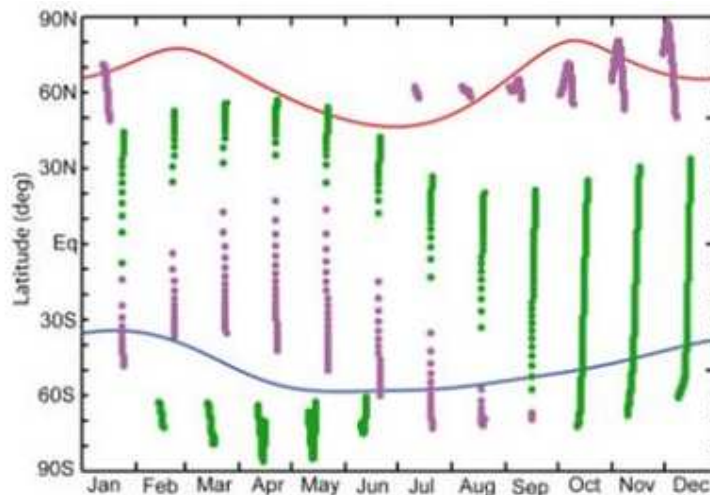


FIG. 3.3 – Couverture géographique annuelle de SAGE III en modes d'occultations solaire et lunaire. Le trait rouge correspond au coucher de soleil, le bleu au lever de soleil, les points verts au coucher de lune et les points violets au lever de lune. D'après Trepte et al. [2001].

Autre évolution de cet instrument : SAGE III effectue également des mesures d'occultation lunaire et au limbe. La couverture spatiale de SAGE III est donc élargie. Le mode lunaire permet d'effectuer des mesures d'espèces gazeuses essentiellement nocturnes : le trioxyde d'azote ( $\text{NO}_3$ ) et  $\text{OClO}$ . Pour plus de détails sur le mode d'occultation lunaire, se référer à Rind and McCormick [2002] et pour le mode de visée au limbe à Rault [2005]. L'instrument SAGE III est constitué de 3 systèmes [Rind and McCormick, 2002] :

- Le système de visée consiste en un miroir pivotable permettant de scanner le soleil verticalement. Il est accompagné d'un filtre neutre qui sert d'atténuateur en mode d'occultation solaire (facteur d'atténuation de l'ordre de 100). Ce filtre est mobile de sorte à pouvoir être enlevé pour le mode d'occultation lunaire.
- Le télescope. Il est de type Cassegrain - Dall - Kirkham. L'IFOV de SAGE III est de 0.5 minute d'arc (résolution verticale de l'ordre de 0.5 km).
- Le système de détection. Il est constitué d'une barrette de CCD (Charged Couple Device) et d'une photodiode infrarouge InGaAs. La barrette de CCD comprend  $10 \times 809$  pixels couvrant un domaine spectral allant de 280 à 1024 nm avec une résolution spectrale de 1 à 2 nm. Les 809 éléments de la barrette fournissent l'information spectrale. Les 10 pixels, alignés horizontalement sont considérés comme un seul grand pixel. En pratique, l'intégralité des 10 pixels est utilisée en mode lunaire et seulement 3 pixels en mode solaire. Dans la direction verticale de la barrette, les pixels sont regroupés par domaine spectral. Ce regroupement de pixels constitue un canal qui peut être lui même constitué de sous-canaux (voir

tableau 3.2). Cette configuration permet de discriminer efficacement les espèces moléculaires.

En mode solaire, l'ozone mésosphérique (au-dessus de 50 km) sera déduit des mesures dans le canal [281 - 296 nm] constitué de 3 sous-canaux, l'ozone stratosphérique sera déduit des mesures dans la bande [560 - 622 nm] constituée de 10 sous-canaux, le dioxyde d'azote dans la bande [432 - 450 nm] constituée de 19 sous canaux et la vapeur d'eau dans la bande [920 - 971 nm] comprenant 29 sous-canaux. Les pixels de la bande A de l'oxygène [757 - 770 nm] sont utilisables pour déterminer les profils de températures et de densités moléculaires. La photodiode, centrée en 1545 nm, permet la mesure de l'extinction des aérosols à cette longueur d'onde mais permet aussi de faire la distinction entre l'extinction d'un cirrus fin et celles des aérosols. En tout, 12 canaux sont utilisés en mode d'occultation solaire (voir tableau 3.2). Le rapport signal sur bruit en mode d'occultation solaire est de l'ordre de 3000.

La mesure lunaire est plus compliquée du fait de la non homogénéité de la surface lunaire. Celle-ci réfléchit ainsi le rayonnement solaire de façon inhomogène selon les directions. En mode d'occultation lunaire, le rapport signal sur bruit est 10 à 20 fois plus petit que celui du mode d'occultation solaire. Seuls 3 canaux sont utilisés dans le mode d'occultation lunaire, ils sont répertoriés dans le tableau 3.2.

Canaux solaires	Longueur d'onde centrale (nm)	Largeur spectrale (nm)	Nombre de sous-canaux	Espèces cibles	Espèces interférentes
S1	288.8	14.5	3	O <sub>3</sub> mésosphérique	
S2	384.2	4.7	1	Aérosol	NO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub>
S3	441.4	17.9	19	NO <sub>2</sub> , aérosol	O <sub>3</sub>
S4	520.3	4.7	1	Aérosol, nuage	NO <sub>2</sub> , O <sub>3</sub>
S5	591.32	62.2	10	O <sub>3</sub> , aérosol	NO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O
S6	675.5	4.7	1	Aérosol	O <sub>3</sub>
S7	755.3	4.7	1	Aérosol	O <sub>3</sub>
S8	764	12.6	14	O <sub>2</sub> (T,P)	O <sub>3</sub>
S9	869.3	4.6	1	Aerosol	O <sub>3</sub> , H <sub>2</sub> O
S10	945.6	51.3	29	H <sub>2</sub> O	O <sub>3</sub>
S11	1021.6	5.6	6	Aérosol, nuage	O <sub>3</sub>
S12	1545	45	diode	Aérosol, nuage	CO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O
Canaux lunaire	Bande spectrale (nm)			Espèces cibles	
L1	380 - 475			O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> , OClO, NO <sub>3</sub>	
L2	475 - 678.8			O <sub>2</sub> , bande A	
L3	754 - 779.2			O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> , NO <sub>3</sub>	

TAB. 3.2 – Canaux SAGE III en mode d'occultation solaire et lunaire.

Les premiers problèmes annonciateurs de la fin de l'expérience SAGE III com-

mencèrent en juillet 2005 avec une perte de pressurisation de la plateforme affectant plusieurs équipements. Fin 2005, un problème d'horloge affecta l'instrument. En mars 2006, SAGE III tombe en panne définitivement. Les scientifiques de l'équipe du LaRC tentent encore aujourd'hui de traiter les données de janvier à mars 2006.

### 3.2.2 Les instruments POAM

Les instruments POAM (Polar Ozone and Aerosol Measurement) II et III furent développés par le NRL (Naval Research Laboratory) pour déterminer les distributions verticales de l'ozone, de la vapeur d'eau, du dioxyde d'azote, de l'extinction des aérosols et de la température.

POAM II mesure l'atténuation solaire dans 9 canaux étroits, couvrant une gamme spectrale allant approximativement de 350 à 1060 nm (cf tableau 3.3). POAM II a été lancé sur le satellite français SPOT 3 (Satellite Pour l'Observation de la Terre) en septembre 1993 sur une orbite héliosynchrone quasi-polaire à une altitude de 833 km avec un nœud descendant à 10h30 (heure locale). Ces paramètres orbitaux permettent une couverture géographique de 55 à 71° dans l'hémisphère nord et de 63 à 88° dans l'hémisphère sud. Les occultations effectuées dans l'hémisphère nord correspondent toutes à un lever de soleil du point de vue satellitaire et à un coucher de soleil sur Terre. Au sud, les occultations correspondent systématiquement à un coucher de soleil (vu du satellite) et correspondent sur Terre à un lever ou un coucher. A raison de 28 occultations par jour, POAM II effectue ses mesures entre 10 et 60 km avec une résolution verticale de 1.2 à 2 km (IFOV = 0.8 minute d'arc). Lors d'une mesure, POAM II observe fixement le centre de brillance du soleil. Plus de renseignements concernant POAM II sont donnés dans Glaccum et al. [1996]. La mission POAM II prit fin en novembre 1996 suite à une défaillance critique du satellite SPOT 3.

POAM III [Lucke et al., 1999] est le successeur de POAM II. Il fut lancé sur le satellite français SPOT 4 en mars 1998. Les paramètres orbitaux de SPOT 4 sont identiques à ceux de SPOT 3. La couverture géographique est donc toujours la même. Conçu selon les mêmes principes que son prédécesseur POAM II inclut cependant plusieurs améliorations. Sa sensibilité plus importante lui permet de sonder l'atmosphère jusqu'à la haute troposphère. Le rapport signal sur bruit de POAM III est plus élevé que celui de POAM II. Les canaux utilisés par POAM III ne diffèrent que très peu de ceux de POAM II (voir tableau 3.3). La dernière mesure effectuée par POAM III a eu lieu en Décembre 2005.

POAM II		POAM III		Espèces cibles
Longueur d'onde centrale (nm)	Largeur de la bande (nm)	Longueur d'onde centrale (nm)	Largeur de la bande (nm)	
352.3	4.4	353.4	9.7	Diffusion Rayleigh, aérosol
441.6	2.0	439.6	2.1	NO <sub>2</sub> off, aérosol
448.1	2.1	442.2	2.1	NO <sub>2</sub> on
601.4	14.3	603	17.7	O <sub>3</sub>
761.2	2.2	761.3	2.3	O <sub>2</sub> on
781	16.7	779	10.2	O <sub>2</sub> off, aérosol
921	2.1	922.4	2.6	H <sub>2</sub> O off, aérosol
936.4	2.3	935.9	2.6	H <sub>2</sub> O on
1060.3	11.1	1018.	11.6	aérosol

TAB. 3.3 – Canaux POAM II et POAM III. Le qualificatif 'on' signifie que l'espèce considérée présente un pic d'absorption à la longueur considérée et 'off' signifie qu'à la longueur d'onde considérée, l'espèce absorbe moins.

### 3.2.3 ACE-SCISAT

Le 12 août 2003, la NASA lança le satellite canadien SCISAT aussi connu sous le nom de ACE (Atmospheric Chemistry Experiment). Les paramètres orbitaux de ce satellite (orbite circulaire, inclinaison de 74°, altitude de 650 km) permettent aux instruments d'occultation solaire embarqués de couvrir les régions tropicales, de latitudes moyennes et polaires. La figure 3.4 montre la couverture géographique annuelle de ces instruments. L'angle beta représenté sur cette figure correspond à l'angle entre le plan orbital et la direction Terre - Soleil.

Les principaux objectifs de la mission ACE SCISAT sont l'étude des processus chimiques et dynamiques affectant l'ozone stratosphérique, les relations entre la chimie atmosphérique et le changement climatique, l'impact sur l'atmosphère des feux de biomasse, l'impact des aérosols et des nuages sur l'équilibre radiatif de la Terre [Bernath et al., 2005]. Pour ce faire, trois instruments ont été installés sur ce satellite. Un spectromètre à transformée de Fourier baptisé ACE-FTS, un spectrophotomètre nommé MAESTRO (Measurement of Aerosol Extinction in the Stratosphere and the Troposphere Retrieved by Occultation) et un imageur appelé ACE-Imager.

#### 3.2.3.1 ACE - FTS

ACE-FTS est le principal instrument de la mission ACE-SCISAT. Il s'agit d'un spectromètre à transformée de Fourier mesurant le spectre atmosphérique entre 2.2 et 13  $\mu\text{m}$  avec une très bonne résolution spectrale ( $0.02 \text{ cm}^{-1}$ ). Durant la mesure, un miroir ajustable permet à la ligne de visée de rester orientée vers le centre du soleil. Pendant les couchers et levers du soleil, ACE-FTS mesure des séquences de spectres atmosphériques d'absorption à différentes altitudes tangentes. Le rapport signal sur bruit est de l'ordre

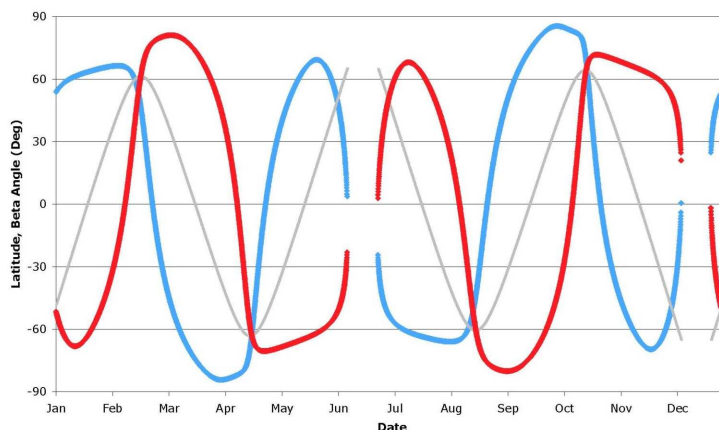


FIG. 3.4 – Couverture géographique des instruments de ACE. La ligne rouge correspond à l'observation de coucher de soleil et la bleue à des levers. La ligne grise représente l'angle entre la direction Terre - Soleil et le plan orbital.

de 300 entre 2.7 et 11  $\mu\text{m}$ . L'angle de vue instantané (IFOV) est de 4 minutes d'arc ce qui correspond à une résolution verticale maximale de 3 à 4 km. Cette résolution verticale dépend de la géométrie d'observation. L'extension verticale des mesures s'étend du sommet des nuages jusque 100 - 150 km.

Après analyse du spectre atmosphérique, les résultats sont inversés spatialement pour obtenir des profils verticaux. Parmi les 32 espèces gazeuses ainsi mesurées, on retrouve la vapeur d'eau,  $\text{O}_3$ ,  $\text{NO}_2$ ,  $\text{HNO}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$ ,  $\text{CH}_4$ ,  $\text{HCl}$ , ... On se référera à l'article de Boone et al. [2005] pour plus de détails concernant cet instrument.

### 3.2.3.2 ACE - MAESTRO

ACE - MAESTRO (que l'on écrira par la suite MAESTRO par souci de simplification) est un double spectromètre à réseaux dont la gamme spectrale s'étend de 285 à 1030 nm [McElroy et al., 2007]. ACE - FTS et MAESTRO utilise le même système de visée. Par conséquent, ils étudient la même colonne d'atmosphère. Toutefois, la résolution verticale de MAESTRO est de l'ordre de 1.7 km. MAESTRO est constitué de deux spectromètres indépendants. L'un est sensible aux rayonnements ultra-violet et visible de 285 à 565 nm avec une résolution spectrale de 1.5 nm. Le second mesure les spectres visible et infrarouge de 515 à 1015 nm avec une résolution spectrale de l'ordre de 2 nm. On les nommera par la suite respectivement spectromètre UV et VIS. Le rapport signal sur bruit de MAESTRO est de l'ordre de 1000 à 3000. La résolution verticale est de l'ordre de 1.7 km. MAESTRO fut également conçu pour pouvoir être utilisé en mode de visée au nadir. Il mesure alors le rayonnement solaire diffusé par le système Terre - atmosphère.

Pendant une occultation, 7% du rayonnement collecté par le miroir ajustable est dirigé vers l'entrée optique de MAESTRO. Une première lame semi-réfléchissante envoie alors une partie de ce rayonnement vers le télescope du spectromètre UV et l'autre vers une deuxième lame semi-réfléchissante. Celle-ci enverra une autre partie du rayonnement incident vers le spectromètre VIS. Le rayonnement restant est dirigé vers la sortie (il fut utilisé sur Terre pour assurer l'alignement du système optique). Les télescopes des spectromètres amplifient le rayonnement incident d'un facteur 7. Aux longueurs d'onde de MAESTRO,

l'atténuation du rayonnement est due à l'absorption de l'ozone et du dioxyde d'azote, l'extinction des aérosols et la diffusion moléculaire.

### 3.2.3.3 ACE - Imager

Le satellite ACE est également équipé de 2 imageurs visible et infrarouge [Gilbert et al., 2007]. Les deux imageurs sont identiques à l'exception de leur propre filtre. L'imageur visible est centré à 527.11 nm et a une largeur à mi-hauteur de 13.28 nm. L'imageur infrarouge est centré en 1020.55 nm et à une largeur à mi-hauteur de 19.44 nm. L'angle de vue est de 30 mrad, ce qui correspond à plus de 3 fois la largeur apparente du disque solaire (de l'ordre de 9 mrad). La zone de formation de l'image sur le détecteur est composé de  $256 \times 256$  pixels. La séquence d'images prises pendant une occultation est analysée pour fournir des profils de transmissions atmosphériques le long des lignes de visée. Ils jouent à la fois un rôle scientifique et un rôle de suivi de la mission. En effet, les informations de pointage sont fournies par l'imageur : les champs de visée des spectromètres sont aussi enregistrés sur des pixels spécifiques des imageurs. Les imageurs voient le soleil entier et par conséquent, la portion de soleil étudiée par les spectromètres est précisément connue. Le rôle scientifique des imageurs est de fournir des profils d'extinction atmosphérique aux longueurs d'onde centrales des imageurs. L'extinction à ces longueurs d'onde est principalement le fait de la diffusion moléculaire, de l'extinction des aérosols et des nuages et de l'absorption de l'ozone (pour les 2 canaux) et du dioxyde d'azote (pour le canal visible). Les longueurs d'onde des imageurs ont été sélectionnées pour correspondre à deux des canaux de l'instrument SAGE II.

## 3.2.4 Les autres instruments d'occultation solaire

D'autres instruments satellitaires utilisant la méthode d'occultation solaire sont ici présentés. Comme les données de ces instruments ne seront pas utilisées dans la suite, les présentations ne seront que succinctes.

L'instrument Halogen Occultation Experiment (HALOE) a été placé en orbite sur la plateforme UARS (Upper Atmosphere Research Satellite) en septembre 1991 [Russell et al., 1993]. A partir de mesures d'occultation, cet instrument restitue les profils verticaux de plusieurs espèces gazeuses ( $O_3$ , HCl, HF,  $CH_4$ ,  $H_2O$ , NO,  $NO_2$ ) et de l'extinction des aérosols à 4 longueurs d'onde infrarouge (2.45, 3.40, 3.46 et 5.26  $\mu m$ ) avec une résolution verticale de 1.6 km. En une année, l'instrument couvre le globe de 80° sud à 80° nord. La gamme d'altitude des mesures s'étend de 15 km à 60 - 130 km selon les espèces (les mesures de NO s'étendant par exemple jusque la thermosphère). Initialement prévu pour une durée de 3 ans, HALOE dura plus de 14 années, sa dernière occultation ayant eu lieu en novembre 2005.

L'instrument SCIAMACHY à bord du satellite européen ENVISAT (ENVironnement SATellite) effectue des mesures d'occultation solaire sur une gamme de longueur d'onde allant de 240 à 2380 nm avec une résolution spectrale de 0.2 à 1 nm. Il peut également effectuer des mesures d'occultation lunaire, des mesures au limbe et des mesures au nadir. La multiplicité des modes de visée permet à cet instrument de couvrir

le globe entier. En mode d'occultation solaire, SCIAMACHY permet d'établir les profils verticaux en ozone, dioxyde d'azote et d'extinction des aérosols.

Une autre mission satellitaire développée par la NASA et baptisée AIM (Aeronomy of Ice Experiment) a été mise en orbite le 25 avril 2007. Cette plateforme satellite est notamment équipée d'un instrument d'occultation solaire baptisé SOFIE (Solar Occultation For Ice Experiment) effectuant des mesures dans la moyenne et haute atmosphère entre 290 et 5260 nm. L'objectif principal de cette mission est l'étude des nuages mésosphériques polaires (PMC).

### 3.3 Conclusions

Depuis 1978, les études satellitaires de la moyenne atmosphère par la méthode d'occultation solaire ont permis de mieux appréhender les processus chimiques, dynamiques et radiatifs régissant le système stratosphérique. Les mesures satellitaires d'occultation ont notamment permis de caractériser plusieurs types de particules stratosphériques incluant les aérosols sulfatés [Thomason et al., 2006], les cirrus, les PSC et les PMC (Polar Mesospheric Clouds). Les grandes explosions volcaniques (Mont Sainte-Hélène en 1980, El Chichón en 1982 et le Mont Pinatubo en 1991) ont injecté des aérosols en masse dans la stratosphère. Les instruments satellitaires ont permis l'étude de l'impact radiatif et chimique d'une telle teneur en aérosols à l'échelle globale [McCormick and Veiga, 1992, Bluth et al., 1992, Guo et al., 2004]. Aujourd'hui, la majorité des aérosols stratosphériques n'est plus d'origine volcanique. Cela permet la caractérisation des aérosols stratosphériques de fond. La chimie de la stratosphère a également largement bénéficié de l'apport des observations satellitaires d'occultation solaire. Les processus menant à la destruction de l'ozone polaire sont aujourd'hui mieux connus.

Actuellement, les instruments de ACE, SCIAMACHY et SOFIE sont les seuls utilisant la méthode d'occultation solaire encore en fonctionnement. La méthode d'occultation solaire est également utilisée par certains instruments embarqués sous ballon stratosphérique tels les instruments SAOZ (Système d'Analyse par Observation Zénithale) et LPMA (Limb Profile Monitor of the Atmosphere).

Le chapitre suivant présente le travail effectué au LOA concernant le satellite SAGE III. L'algorithme d'inversion développé y est présenté ainsi que la validation des produits obtenus avec ceux issus de l'algorithme officiel et avec les produits issus de mesures coïncidentes d'autres satellites.





## Chapitre 4

# L'algorithme d'inversion de SAGE III : description et validation des produits

L'instrument SAGE III en mode d'occultation solaire offre l'opportunité d'accéder aux profils verticaux de concentration en ozone, de concentration en dioxyde d'azote et d'extinction des aérosols à plusieurs longueurs d'onde (cf tableau 3.2). Plusieurs équipes ont développé indépendamment des algorithmes d'inversion différents permettant d'accéder à ces profils verticaux à partir des transmissions atmosphériques le long de chaque ligne de visée d'une mesure. Ces différents algorithmes permettent d'inter-valider les produits obtenus. L'équipe du LaRC est en charge du développement de l'algorithme officiel menant aux profils verticaux distribués à la communauté scientifique, il est détaillé dans la section 4.2. En parallèle, l'équipe scientifique du département de physique atmosphérique de l'université de Saint Petersburg (qu'on notera par la suite SPbSU) a développé son propre algorithme d'inversion [Polyakov et al., 2005]. Au sein du Laboratoire d'Optique Atmosphérique, mon travail de thèse a notamment consisté à appliquer et à améliorer un autre algorithme d'inversion développé au laboratoire [Bazureau, 2001, Brogniez et al., 2002]. La différence majeure entre notre algorithme et celui du LaRC est l'ordre des inversions : nous effectuons d'abord l'inversion spatiale puis l'inversion spectrale. Ce chapitre présente dans une première partie cet algorithme d'inversion ainsi que les différents tests de sensibilité effectués (sur les sections efficaces d'absorption et de diffusion moléculaire) et dans une deuxième partie la validation des produits obtenus. Il est à noter que pendant la mission SAGE III, il n'y a eu aucune éruption volcanique majeure, la dernière étant celle du Mont Pinatubo en 1991. Les aérosols détectés par SAGE III correspondent ainsi aux aérosols de fond. La validation des résultats de l'algorithme du LOA est faite par comparaisons avec les produits SAGE III issus des deux autres algorithmes d'inversion et également à l'aide de mesures coïncidentes obtenues par d'autres instruments : les instruments satellitaires SAGE II et POAM III et l'instrument sous ballon SPIRALE (SPectroscopie Infra-Rouge par Absorption de Lasers Embarqués).

## 4.1 L'algorithme d'inversion du LOA

### 4.1.1 Description

L'inversion est la procédure permettant d'obtenir des profils verticaux d'espèces atmosphériques ou d'extinction des aérosols à partir des profils de transmissions atmosphériques le long de la ligne de visée. L'inversion nécessite donc au préalable l'obtention de ces transmissions atmosphériques à partir de la mesure satellitaire. Cette étape préliminaire est effectuée par le LaRC [Cunnold and McCormick, 2002]. Nous rappelons ici les différentes étapes nécessaires à l'élaboration de ces transmissions. Une séquence de mesure SAGE III consiste en l'enregistrement de 809 pixels mais seulement 70 à 80 d'entre eux sont transmis en routine au sol pour des raisons de capacité de transmission de données au sol. Ils sont suffisants pour permettre d'obtenir les produits voulus. L'algorithme de transmission requiert 5 étapes :

1. Contrôle des données : cette étape repère les données télémétriques manquantes ou fausses et déterminent si, le cas échéant, elles sont 'réparables',
2. Enregistrement de la position de la ligne de visée (position du soleil et altitude tangente),
3. Enregistrement de la longueur d'onde : le spectre solaire mesuré par SAGE III est ajusté pour correspondre aux raies de Fraunhofer,
4. Rapport entre les éclairissements solaires atmosphériques et l'éclairissement solaire hors atmosphère pour fournir un profil de transmission atmosphérique à toutes les longueurs d'onde du spectre couvertes par SAGE III.
5. Détermination du profil de transmission moyen dans chaque canaux par analyse statistique des données de transmissions individuelles tous les 0.5 km de 0.5 à 100 km.

Ces profils de transmissions multi-spectrales constituent le point de départ de l'algorithme d'inversion.

Les premières étapes de l'algorithme sont effectuées en terme d'épaisseur optique tangente. Nous rappelons ici la relation simple liant l'épaisseur optique tangente  $\delta$  et la transmission  $\tau$  à la longueur d'onde  $\lambda$  et à l'altitude tangente  $Z_t$  :

$$\tau(\lambda, Z_t) = \exp[-\delta(\lambda, Z_t)] \quad (4.1)$$

L'algorithme d'inversion développé au LOA utilise la version 4 des profils de transmission atmosphérique fournis par le LaRC. 14 longueurs d'onde sont utilisées par l'algorithme, elles sont résumées dans le tableau 4.1

#### 4.1.1.1 Epaisseur optique à une altitude tangente

L'expression générale de l'épaisseur optique sur un trajet atmosphérique de longueur  $x$  est :

$$\delta(\lambda) = \int_0^x k^{ext}(\lambda, l') dl' \quad (4.2)$$

Pour une ligne de visée au limbe, on l'exprime à une altitude tangente  $Z_t$  :

$$\delta(\lambda, Z_t) = \int_{-\infty}^{+\infty} k^{ext}(\lambda, Z) \frac{ds}{dz} dz \quad (4.3)$$

Longueur d'onde (nm)	Espèces cibles	Espèces interférentes
$\lambda_1 = 384.269$	Aérosol	$\text{NO}_2$ , $\text{O}_3$
$\lambda_2 = 439.606$	$\text{NO}_2$ on	Aérosol, $\text{O}_3$
$\lambda_3 = 442.42$	$\text{NO}_2$ off	Aérosol, $\text{O}_3$
$\lambda_4 = 447.11$	$\text{NO}_2$ off	Aérosol, $\text{O}_3$
$\lambda_5 = 448.05$	$\text{NO}_2$ on	Aérosol, $\text{O}_3$
$\lambda_6 = 448.99$	$\text{NO}_2$ off	Aérosol, $\text{O}_3$
$\lambda_7 = 449.93$	$\text{NO}_2$ off	Aérosol, $\text{O}_3$
$\lambda_8 = 520.312$	aérosol	$\text{NO}_2$ , $\text{O}_3$
$\lambda_9 = 601.237$	$\text{O}_3$ , aérosol	$\text{NO}_2$
$\lambda_{10} = 675.575$	aérosol	$\text{NO}_2$ , $\text{O}_3$
$\lambda_{11} = 755.378$	aérosol	$\text{O}_3$
$\lambda_{12} = 869.331$	aérosol	$\text{O}_3$
$\lambda_{13} = 1022.1$	aérosol	$\text{O}_3$
$\lambda_{14} = 1545.$	aérosol	$\text{CO}_2$ , $\text{H}_2\text{O}$

TAB. 4.1 – Liste des canaux SAGE III utilisés dans l'algorithme du LOA.

où  $k^{ext}$  est le coefficient d'extinction à l'altitude  $Z$  et  $ds$  est le trajet dans la couche  $dz$ . L'intégration sur le chemin optique se fait ici du soleil au satellite. Il paraît évident de réduire ce chemin optique au seul chemin traversant l'atmosphère. On notera  $I$  le point d'entrée du chemin optique dans l'atmosphère (à l'altitude  $Z_{in}$ ) et  $O$  le point de sortie (d'altitude  $Z_{out}$ ) (voir figure 4.1), l'épaisseur optique le long de la ligne de visée s'écrit :

$$\delta(\lambda, Z_t) = \int_{Z_{in}}^{Z_{out}} k^{ext}(\lambda, Z) \frac{ds}{dz} dz \quad (4.4)$$

L'algorithme d'inversion de SAGE III développé au LOA s'appuie sur l'hypothèse d'homogénéité sphérique de l'atmosphère. L'atmosphère est divisée en un certain nombre de couches d'épaisseur égale. On considère alors que les aérosols et les gaz y sont répartis de façon homogène. Cette hypothèse est valable pour la plupart des constituants de la stratosphère mais elle n'est pas toujours vérifiée pour les nuages et les composants de la troposphère [Rind and McCormick, 2002]. Notons que de récentes études ([Berthet et al., 2007], [Swartz et al., 2006]) invalident cette hypothèse dans la stratosphère dans le cas de situations dynamiques complexes (mesures effectuées aux abords du vortex polaire). L'algorithme du LOA suppose ainsi l'atmosphère divisée en couches concentriques d'épaisseur égale à 500 m de 0 à 100 km. Les épaisseurs optiques le long de la ligne de visée, de part et d'autre du point sub tangent  $A_{i1}$  (d'altitude  $Z_t$ ) sont donc égales. Par conséquent, l'altitude du satellite étant supérieure à 100 km, l'épaisseur optique peut s'écrire :

$$\delta(\lambda, Z_t) = 2 \int_{Z_t}^{Z_{out}} k^{ext}(\lambda, Z) \frac{ds}{dz} dz \quad (4.5)$$

L'équation 4.5 peut être discrétisée :

$$\delta(\lambda, Z_t) = 2 \sum_{Z=Z_t}^{Z_{out}} k^{ext}(\lambda, Z) s_i(Z, Z_t) \quad (4.6)$$

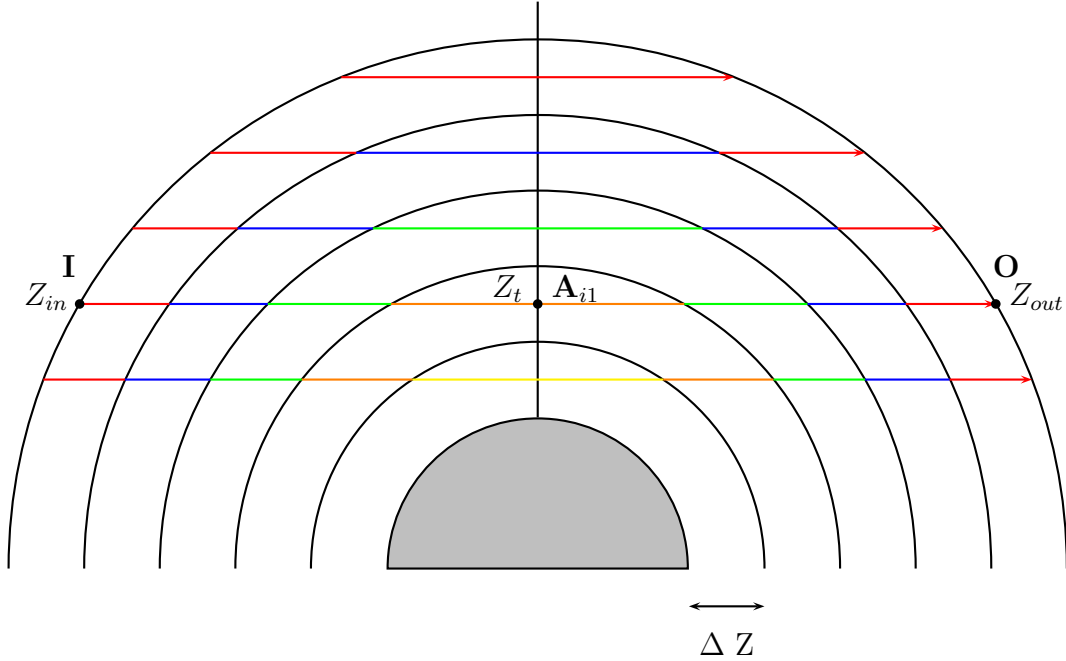


FIG. 4.1 – Représentation schématique de l'inversion spatiale pour une atmosphère divisée en 5 couches et sans considérer la réfraction.

$s_i$  représente le trajet atmosphérique dans la couche  $i$ . La loi de Snell-Descartes permet de prendre en compte la réfraction dans le calcul du trajet optique. L'indice de réfraction utilisé est issu de Bucholtz [1995]. De simples considérations géométriques permettent alors le calcul de ce trajet en fonction de l'altitude tangente et du rayon de la Terre notamment. Celui-ci est pris égal à 6370 km quelle que soit la localisation géographique de la mesure de SAGE III. Le calcul du trajet optique est détaillé dans Bazureau [2001]. L'extinction du rayonnement le long de la ligne de visée est causée par la diffusion Rayleigh, l'extinction des aérosols et l'absorption des gaz présents. Ainsi, le coefficient d'extinction total  $k^{ext}(\lambda, Z)$  s'écrit comme la somme des coefficients d'extinction représentant chacun de ces phénomènes :

$$k^{ext}(\lambda, Z) = k_{Ray}^{dif}(\lambda, Z) + k_{aero}^{ext}(\lambda, Z) + \sum_{j=1}^N k_{gaz_j}^{abs}(\lambda, Z) \quad (4.7)$$

où  $N$  est le nombre de gaz absorbants à la longueur d'onde considérée (voir tableau 4.1).

L'épaisseur optique totale  $\delta(\lambda, Z)$  est dans un premier temps corrigée de l'épaisseur optique de diffusion Rayleigh dans les 14 canaux utilisés. Pour effectuer ce calcul plus finement nous découpons chaque couche en 20 sous-couches de 25 m d'épaisseur. Le calcul est effectué dans chaque sous-couche en utilisant le formalisme explicité dans le paragraphe 2.3.3.1, l'indice de réfraction de Bucholtz [1995] et les profils météorologiques fournis par le National Center for Environmental Prediction (NCEP) pour chaque mesure de SAGE III. Nous obtenons l'épaisseur optique corrigée de la contribution de la diffusion moléculaire  $\bar{\delta}(\lambda, Z_t)$  :

$$\bar{\delta}(\lambda, Z_t) = \delta_{aero}(\lambda, Z_t) + \sum_{j=1}^N \delta_{gaz_j}(\lambda, Z_t) \quad (4.8)$$

Dans le canal SAGE III à 1545 nm, le dioxyde de carbone est un absorbant qui présente un spectre de raies d'absorption. L'épaisseur optique d'absorption du CO<sub>2</sub> le long de la ligne de visée est calculée en utilisant le modèle en bande MODTRAN version 5. Elle est ensuite déduite de l'épaisseur optique totale. Le calcul du coefficient d'extinction dans ce canal sera détaillé dans le paragraphe 4.1.1.2 et fait l'objet d'un article soumis pour publication.

De manière générale, l'épaisseur optique corrigée du Rayleigh (et de l'absorption de CO<sub>2</sub> à 1545 nm) peut s'écrire comme la somme des épaisseurs optiques de chaque intervenant (aérosol et/ou gaz) :

$$\bar{\delta}(\lambda, Z_t) = \sum_{j=1}^{N'} \delta_j(\lambda, Z_t) \quad (4.9)$$

Ainsi apparaît une double sommation, l'une concernant la contribution des différentes espèces et l'autre concernant chaque couche :

$$\bar{\delta}(\lambda, Z_t) = 2 \sum_{l=1}^{N'} \sum_{Z=Z_t}^{Z_{out}} \bar{k}_l(\lambda, Z) s_i(Z, Z_t) \quad (4.10)$$

La procédure d'inversion requiert alors deux étapes distinctes :

- l'inversion spatiale concernant la sommation des contributions de chaque couche.
- l'inversion spectrale concernant la sommation des contributions de chaque espèces (extinction des aérosols et/ou absorptions des gaz).

Les sommations de l'équation 4.10 étant permutable, l'ordre des inversions l'est également. L'algorithme développé par le LaRC propose d'effectuer en premier lieu l'inversion spectrale obtenant ainsi les épaisseurs optiques de chaque espèce le long de la ligne de visée puis d'inverser spatialement afin d'accéder aux profils verticaux désirés. L'algorithme du LOA effectue tout d'abord l'inversion spatiale, nous obtenons ainsi les profils verticaux des coefficients d'extinction dans chaque couche. Ensuite est effectuée l'inversion spectrale séparant la contribution de chaque espèce. Avant d'effectuer l'inversion spatiale, nous corrigeons les épaisseurs optiques totales de la diffusion Rayleigh (dans tous les canaux) et de l'absorption du dioxyde de carbone à 1545 nm.

#### 4.1.1.2 Le canal à 1545 nm

L'instrument SAGE III est équipé d'une photodiode infrarouge permettant la mesure de l'éclairement dans le canal à 1545 nm. Comme nous le verrons dans les paragraphes suivant, le coefficient d'extinction des aérosols à 1545 nm est le point de départ de notre algorithme. Il est alors important de bien évaluer ce coefficient d'extinction. Dans ce canal, l'extinction du rayonnement incident est le fait de la diffusion Rayleigh, de l'absorption du CO<sub>2</sub> et de H<sub>2</sub>O et de l'extinction par les aérosols :

$$\delta_{tot}^{ext}(1545) = \delta_{Ray}^{dif}(1545) + \delta_{H_2O}^{abs}(1545) + \delta_{CO_2}^{abs}(1545) + \delta_{aer}^{ext}(1545) \quad (4.11)$$

La figure 4.2 montre les contributions relatives de la diffusion Rayleigh, de l'absorption du dioxyde de carbone et de l'extinction des aérosols. L'absorption de la vapeur d'eau n'est pas considérée dans cette figure, nous verrons qu'elle n'influe pas les résultats obtenus dans la stratosphère. En-dessous de 22 km, les principaux acteurs de l'extinction

du rayonnement sont les aérosols, ils contribuent à l'extinction totale à hauteur de 35 à 45%. La contribution de l'absorption du dioxyde de carbone dans cette gamme d'altitude varie autour de 30% et celle de la diffusion Rayleigh autour de 25%. Au-delà de 22 km, les aérosols deviennent moins nombreux et contribuent ainsi de moins en moins à l'extinction du rayonnement. L'absorption du  $\text{CO}_2$  est alors prépondérante, atteignant près de 60% à 28 km. Il est alors impératif de calculer l'absorption du  $\text{CO}_2$  le mieux possible. Notons que ces profils des contributions relatives dans le canal à 1545 nm s'observent de façon quasi-identique pour les autres événements SAGE III.

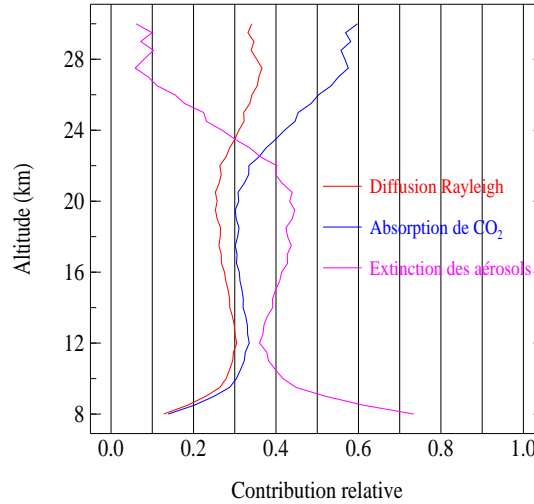


FIG. 4.2 – Contribution relative des épaisseurs optiques tangentes d'absorption de  $\text{CO}_2$ , de l'extinction des aérosols et de la diffusion Rayleigh dans le canal à 1545 nm pour un événement SAGE III choisi aléatoirement.

Après correction de la diffusion Rayleigh, on estime la contribution de l'absorption du dioxyde de carbone. Le spectre d'absorption du dioxyde de carbone est constitué d'une multitude de raies (voir figure 2.13 et 2.14). Le calcul de l'épaisseur optique d'absorption du  $\text{CO}_2$  requiert donc l'utilisation de modèles.

L'algorithme du LOA utilise le code de transfert radiatif MODTRAN version 5. C'est un modèle statistique en bande qui permet le calcul de transmittance et de luminance atmosphérique de l'ultraviolet à l'infrarouge thermique (0.2 à 10000  $\mu\text{m}$ ). Des comparaisons entre MODTRAN et un modèle LBL (Line By Line, c'est un modèle faisant un calcul de transmission exacte raie par raie) montrent des différences de seulement quelques pourcents [Clough et al., 2005]. La prise en compte des inhomogénéités des trajets atmosphériques se base sur l'approximation de Curtis-Godson [Curtis, 1952, Godson, 1955] pour les versions de MODTRAN antérieures à la version 4 (voir section 2.3.4.4). Dans la version 5, un algorithme basé sur les fonctions k-corrélées [Lacis and Oinas, 1991] est utilisé pour rendre compte de ces inhomogénéités. L'algorithme du LaRC utilise quant à lui, une méthode EGA. Ces 2 méthodes sont détaillées dans les chapitres 2.3.4.4 et 2.3.4.5.

### Comparaison des 2 méthodes :

Dans un premier temps, les épaisseurs optiques d'absorption du  $\text{CO}_2$  ont été calculées avec la version 4 de MODTRAN [Berk et al., 1999]. Dans cette version, ainsi que pour

la méthode EGA, les données spectroscopiques utilisées sont issues de la compilation HITRAN 2000 [Rothman et al., 2003]. La figure 4.3 montre les profils des épaisseurs optiques d'absorption du dioxyde de carbone calculées à partir du modèle MODTRAN4 (en magenta) et du modèle EGA (en rouge) pour 4 événements SAGE III choisis aléatoirement (2 au nord et 2 au sud) et la figure 4.4 présente les profils verticaux des différences relatives entre ces épaisseurs optiques (en bleu). Les différences relatives sont calculées de la façon suivante :

$$\text{DIFF}(z) = 200 * \left( \frac{\delta_{CO_2}^{MOD}(z) - \delta_{CO_2}^{EGA}(z)}{\delta_{CO_2}^{MOD}(z) + \delta_{CO_2}^{EGA}(z)} \right) \quad (4.12)$$

Au-dessus de 40 km, les profils MODTRAN4 et EGA diffèrent de plus en plus puis, à 55 km, le profil EGA s'interrompt alors que le profil MODTRAN4 continue plus haut. En effet, l'algorithme EGA suppose le sommet de l'atmosphère à 55 km alors que l'algorithme MODTRAN le suppose plus haut. Si on calcule l'épaisseur optique tangente d'absorption du CO<sub>2</sub> avec MODTRAN4 en fixant le sommet de l'atmosphère à 55 km, les profils MODTRAN4 obtenus sont très proches des profils EGA. Néanmoins, nous avons vérifié que l'impact du sommet de l'atmosphère sur le calcul de l'épaisseur optique d'absorption du CO<sub>2</sub> a un impact négligeable sur les profils verticaux des coefficients d'extinction des aérosols à 1545 nm. Nous avons donc gardé dans nos calculs le sommet de l'atmosphère à 100 km. En-dessous de 40 - 45 km, les différences relatives entre MODTRAN4 et EGA sont de l'ordre de 13% (MODTRAN4 supérieur à EGA). Au-dessus de 40 - 45 km, les différences augmentent du fait des différents sommets d'atmosphères utilisés dans les deux modèles.

Les différences observées en-dessous de 40 km restant inexplicables, nous avons testé une version beta de MODTRAN5 [Berk et al., 2005]. Les principales améliorations apportées à MODTRAN5 concernant notre problème sont les suivantes : la résolution spectrale peut être de 0.1  $\mu m$  et les données spectroscopiques ont été mises à jour avec la base de donnée HITRAN 2004 [Rothman et al., 2005]. L'amélioration de la résolution spectrale a amené à reformuler notamment la forme des raies. Les profils des épaisseurs optiques d'absorption de CO<sub>2</sub> obtenus avec MODTRAN5 sont représentés en bleu sur la figure 4.3 et les différences relatives entre MODTRAN5 et EGA sont en rouge sur la figure 4.4. Les épaisseurs optiques EGA sont supérieures à celles obtenues par MODTRAN5 pour les altitudes inférieures à environ 10 km. Au-dessus, c'est l'inverse. Entre 0 et 25 km, les différences relatives sont inférieures à 5% en valeurs absolues. Elles augmentent entre 25 et 40 km puis plus fortement pour la même raison de différence de sommets d'atmosphères utilisés dans les 2 modèles. Les différences observées entre les profils issus de MODTRAN4 et 5 (6% en-dessous de 35 km et presque aucune différence au-dessus) sont imputables au changement de formulation du calcul entre ces deux modèles. L'accord entre MODTRAN5 et EGA étant meilleur qu'entre MODTRAN4 et EGA, nous calculerons dans la suite les épaisseurs optiques d'absorption du CO<sub>2</sub> à l'aide de MODTRAN5.



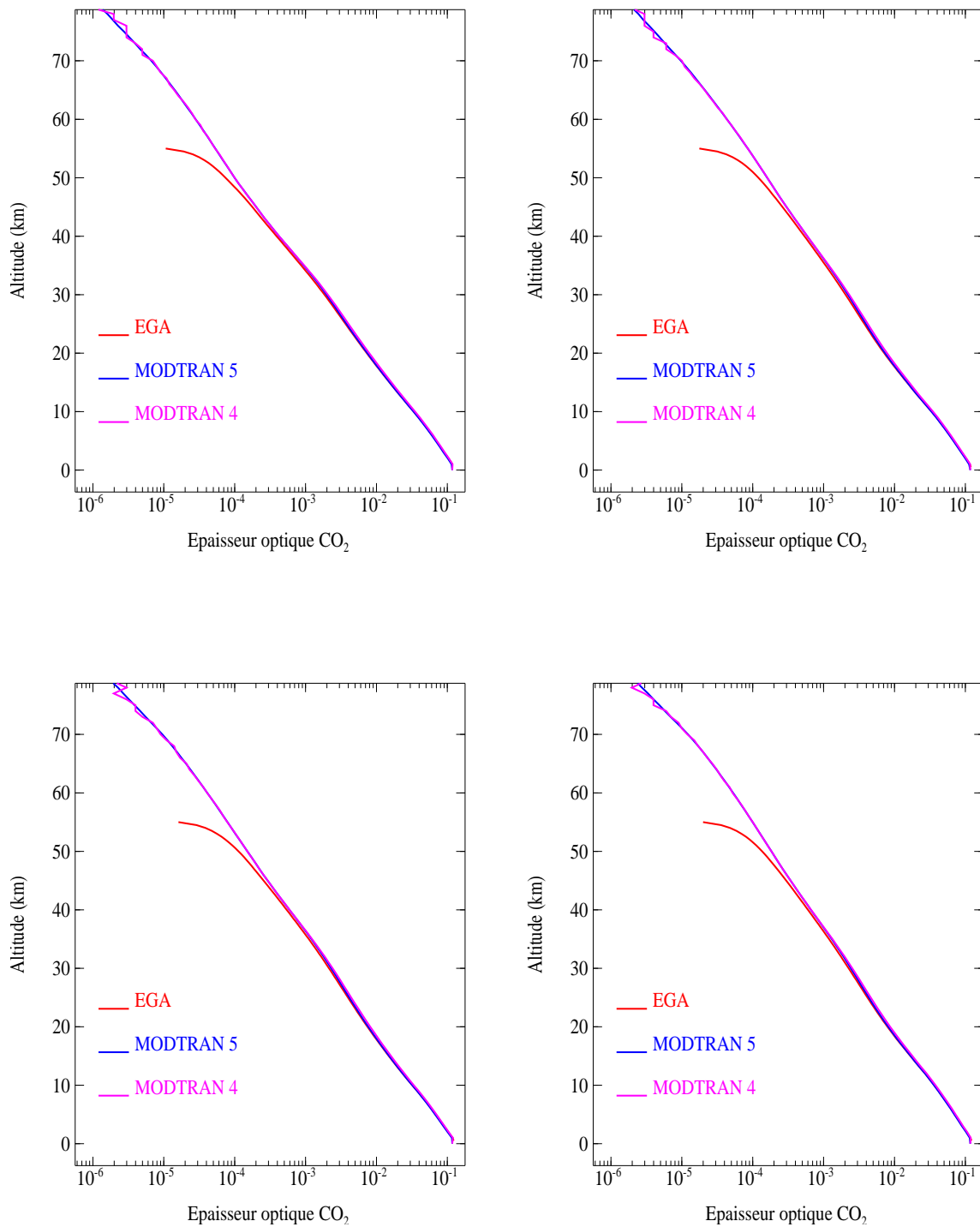


FIG. 4.3 – Profils verticaux des épaisseurs optiques d'absorption du CO<sub>2</sub> le long de la ligne de visée pour 4 événements SAGE III choisis aléatoirement calculées avec la méthode EGA, MODTRAN4 et MODTRAN5.

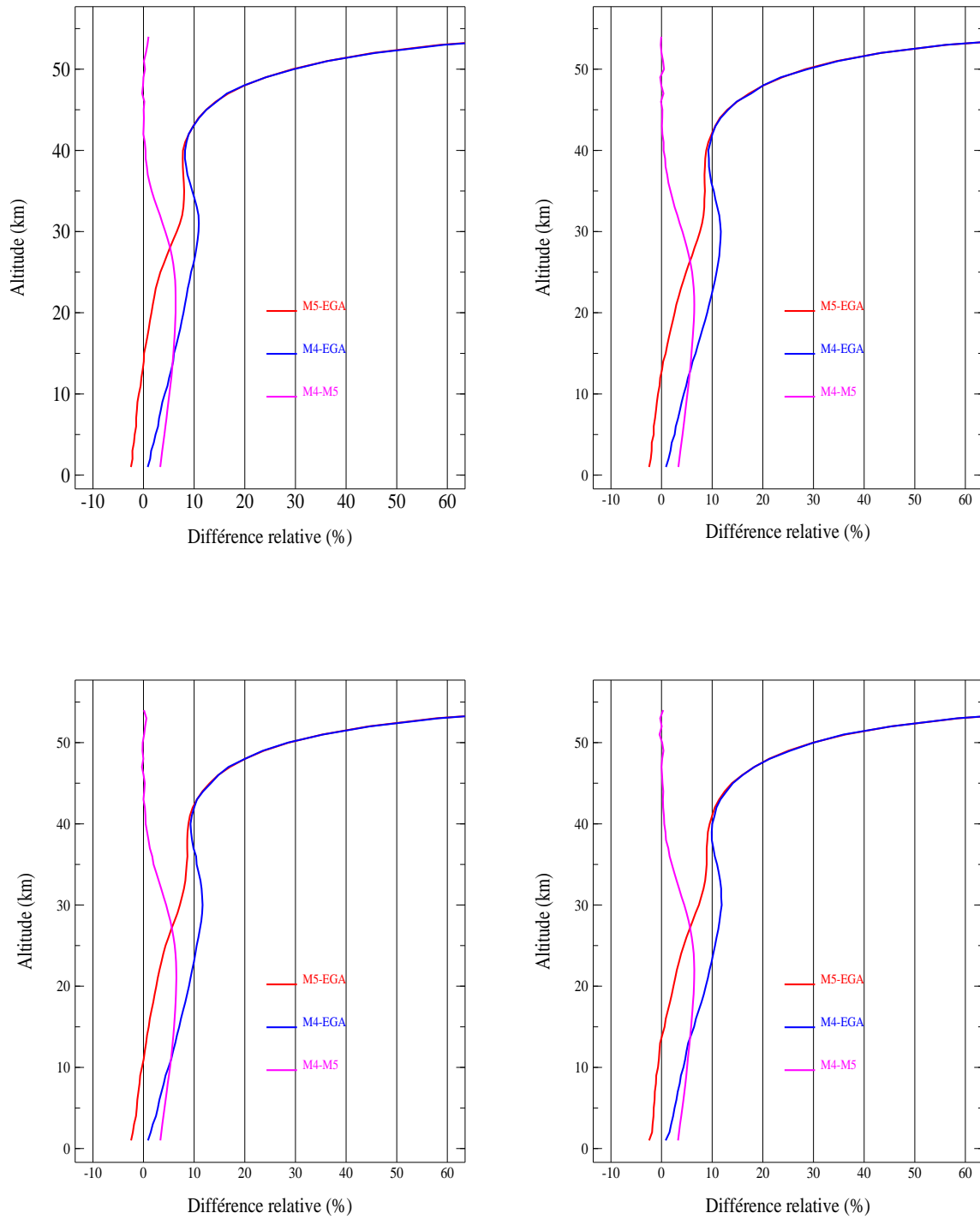


FIG. 4.4 – Profils verticaux des différences relatives entre les profils de la figure 4.3 calculées selon les différences indiquées en légende par rapport à la moyenne.

### Variation de l'épaisseur optique d'absorption de $\text{CO}_2$ en fonction du contenu en dioxyde de carbone :

Le rapport de mélange en dioxyde de carbone est un des paramètres d'entrée de MODTRAN. Il est pris égal à 372 ppmv pour se conformer à la valeur prise par l'équipe du LaRC. Une étude de sensibilité a été menée concernant ce rapport de mélange. En effet, comme le montre la figure 1.1, la teneur en dioxyde de carbone dans l'atmosphère est en augmentation. On s'est alors demandé quelle était l'influence d'une variation du rapport de mélange de  $\text{CO}_2$  sur les épaisseurs optiques calculées par MODTRAN5. Nous avons calculé les profils verticaux des épaisseurs optiques tangentes d'absorption du  $\text{CO}_2$  avec différentes valeurs de rapport de mélange choisies autour de 372 ppmv pour un événement SAGE III. Nous avons choisis 4 valeurs en accord avec la gamme de rapport de mélange en  $\text{CO}_2$  disponible dans le rapport GIEC [2007]. La figure 4.5 montrent les résultats de cette étude. Il s'avère que les profils sont très proches : pour un changement de 8 ppmv, les différences relatives sont seulement de 1.2%, la différence augmentant légèrement avec l'altitude. Sur la durée de vie de SAGE III, le rapport de mélange de  $\text{CO}_2$  n'a augmenté que de 6 ppmv, ce qui implique une variation de l'épaisseur optique d'absorption de seulement 1 à 1.2% entre 8 et 30 km. Il apparaît alors raisonnable d'utiliser un rapport de mélange constant pour toutes les mesures SAGE III.

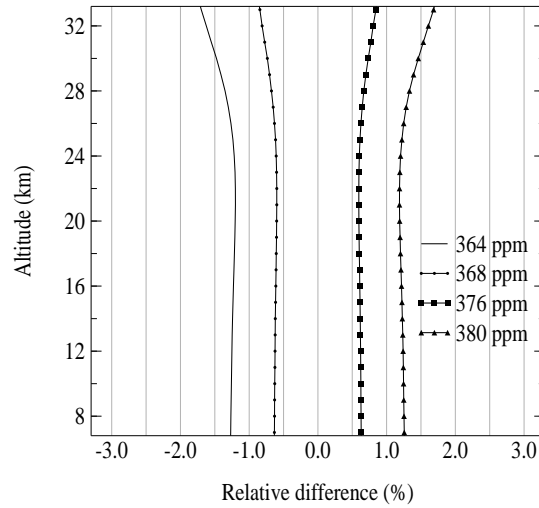


FIG. 4.5 – Profils verticaux des différences relatives entre les épaisseurs optiques d'absorption de  $\text{CO}_2$  calculées avec différents rapports de mélange de  $\text{CO}_2$  et celle calculée avec 372 ppmv en utilisant MODTRAN5.

**La contribution de la vapeur d'eau** est également estimée à l'aide de MODTRAN5. Le spectre d'absorption de la vapeur d'eau est un spectre de raies auquel se superpose un continuum. Ce continuum a permis de comprendre les désaccords entre les observations expérimentales et les calculs d'absorption basés uniquement sur la notion de profil de raies. Dans le canal SAGE III à 1545 nm, la vapeur d'eau absorbe très peu. La figure 4.6 présente les profils verticaux des transmissions de la vapeur d'eau (pour le continuum à droite et hors continuum à gauche) pour un événement SAGE III choisi aléatoirement et pour différents contenus intégrés en vapeur d'eau. Au-dessus de 12 km, l'absorption de la vapeur d'eau est nulle quel que soit le contenu intégré en vapeur d'eau.

En-dessous de 12 km, l'absorption du continuum de la vapeur d'eau est négligeable (la transmission ne descend pas en dessous de 0.98 pour un contenu intégré de  $1 \text{ g.cm}^{-2}$ ). L'influence de l'absorption de la vapeur d'eau ne se fait ressentir qu'à très basse altitude pour un contenu intégré en vapeur d'eau élevé ( $1 \text{ g.cm}^{-2}$ ). L'épaisseur optique d'absorption de la vapeur d'eau sera ainsi négligée dans la suite.

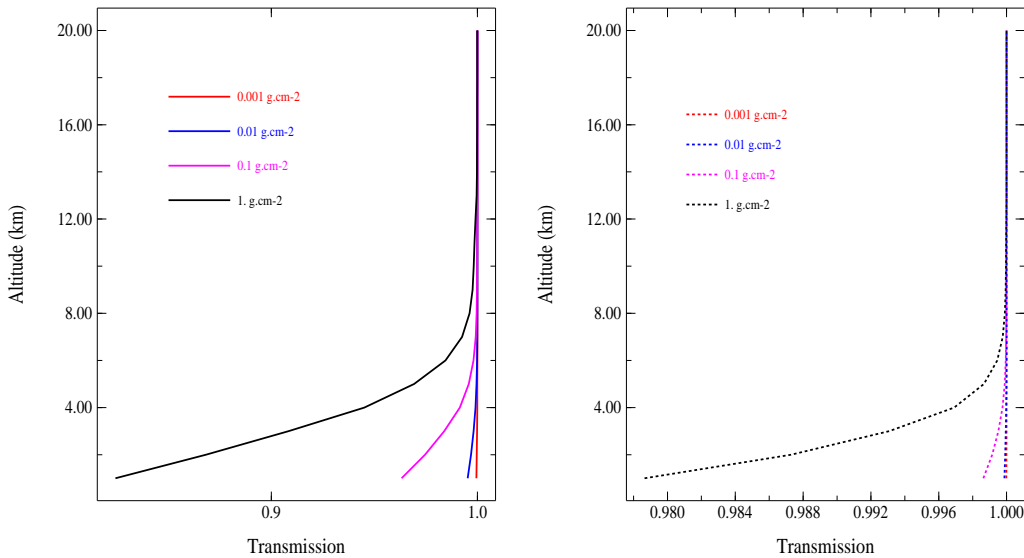


FIG. 4.6 – Profils verticaux des transmissions de la vapeur d'eau à 1545 nm calculées avec MODTRAN5 pour différents contenus intégrés en vapeur d'eau le long des lignes de visée d'un événement SAGE III choisi aléatoirement. La figure de gauche correspond à l'absorption hors continuum et celle de droite correspond à l'absorption du continuum.

Après correction de la diffusion Rayleigh et de l'absorption du dioxyde de carbone, les profils verticaux des coefficients d'extinction totaux sont obtenues après inversion spatiale (pelure d'oignon).

#### 4.1.1.3 L'inversion spatiale

La figure 4.1 représente le principe de l'inversion spatiale pour une atmosphère simple décomposée en cinq couches d'épaisseur  $\Delta Z$ . Par souci de clarté, seules cinq lignes de visée  $y$  sont représentées sans tenir compte de la réfraction à l'interface entre 2 couches. L'inversion spatiale consiste à déterminer pour chaque ligne de visée la contribution  $\bar{k}(\lambda, Z_t)$  de la couche contenant le point subtangent. Plusieurs méthodes d'inversion spatiale existent. Les plus utilisées sont la pelure d'oignon et la méthode de Chahine [Chahine, 1972]. Cette dernière est une méthode itérative qui, à partir d'un profil a priori, converge vers le profil recherché par une méthode de relaxation généralisée. Les algorithmes mis en place au LOA pour inverser les transmissions de SAGE II [Chu et al., 1989], POAM II [Ramana-nahérisoa, 1998] et POAM III incluent la méthode d'inversion spatiale de Chahine.

La méthode de la pelure d'oignon est quant à elle appliquée dans l'algorithme d'inversion de SAGE III. Son principe est simple et est illustré sur la figure 4.1. La mesure faite dans la dernière couche (représentée en rouge sur la figure 4.1) concerne uniquement cette couche. En utilisant l'hypothèse d'homogénéité sphérique de l'atmosphère, l'information

concernant la deuxième couche (la bleue) est obtenue en corrigeant l'épaisseur optique totale le long de la ligne de visée de celle de la couche supérieure. La même procédure se répète ainsi jusqu'au sol fournissant ainsi le profil vertical du coefficient d'extinction corrigé de la diffusion moléculaire  $\bar{k}(\lambda, Z_t)$ .

Bazureau [2001] a montré, à partir de profils simulés, que les deux méthodes d'inversion fournissaient des résultats très semblables. Notre procédure de restitution des incertitudes étant une méthode statistique, nous avons utilisé la méthode de la pelure d'oignon.

#### 4.1.1.4 L'inversion spectrale

A l'issue de l'inversion spatiale, nous disposons des profils verticaux des coefficients d'extinction totaux  $k(\lambda_i, Z)$  corrigés de la diffusion Rayleigh et de l'absorption du  $\text{CO}_2$  à 1545 nm. Il reste ainsi à déterminer la contribution de chacune des espèces interférant dans chaque canal (voir tableau 4.1).

La procédure utilisée par l'algorithme du LOA requiert les données spectroscopiques concernant l'ozone et le dioxyde d'azote. Les sections efficaces choisies pour notre inversion correspondent à celles utilisées par l'équipe du LaRC : pour l'ozone, les données de Bogumil et al. [2003] (SCIAMACHY) à 223 K seront utilisées et celles de Harder et al. [1997] à 230 K pour le dioxyde d'azote. Ces sections efficaces sont convoluées à chaque longueur d'onde par la fonction réponse de chaque pixel de l'instrument. La figure 4.7 montre les sections efficaces convoluées utilisées en fonction de la longueur d'onde. L'influence du choix du jeu des sections efficaces utilisés et celle de la température sur les profils restitués seront discutées dans le paragraphe 4.1.2.1.

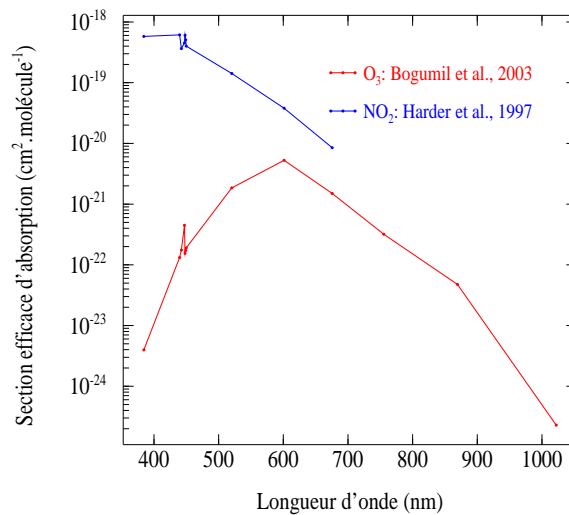


FIG. 4.7 – Sections efficaces d'absorption utilisées dans l'algorithme du LOA.

L'algorithme du LOA se déroule étape par étape (la variable d'altitude  $Z$  est ici supprimée par souci de simplification, chaque étape étant bien sûr effectuée à chaque altitude) :

1. la première étape consiste en une **première estimation du coefficient d'Angström**  $\alpha$ . Ce coefficient intervient dans la loi d'Angström [Angström, 1929] décrivant les variations spectrales du coefficient d'extinction des aérosols :

$$\frac{k_{aer}^{ext}(\lambda)}{k_{aer}^{ext}(\lambda')} = \left(\frac{\lambda}{\lambda'}\right)^{-\alpha} \quad (4.13)$$

Il n'est cependant qu'approximatif et ne représente raisonnablement bien la réalité que pour les particules de dimension moyenne. Le coefficient d'Angström dépend de la taille et du type des aérosols. Il varie typiquement de 0.5 pour les gros aérosols à 3 pour les plus petits. Pour les très grosses particules, le coefficient d'Angström peut devenir négatif [Lenoble and Brogniez, 1985]. Les coefficients d'extinction à 1545 nm ( $\lambda_{14}$ ) et à 1022 nm ( $\lambda_{13}$ ) sont utilisés pour une première estimation du coefficient d'Angström. En effet, après correction de la diffusion Rayleigh et de l'absorption du  $\text{CO}_2$  (voir 4.1.1.2), il ne reste dans le canal à 1545 nm que la contribution de l'extinction des aérosols. A 1022 nm, l'ozone n'absorbe que très légèrement : on peut considérer en première approximation la contribution de l'absorption de l'ozone négligeable dans ce canal. Par conséquent, le coefficient d'extinction total à 1022 nm est considéré dans cette étape comme étant le coefficient d'extinction des aérosols :

$$\alpha = -\frac{\ln\left(\frac{k_{aer}^{ext}(\lambda_{13})}{k_{aer}^{ext}(\lambda_{14})}\right)}{\ln\left(\frac{\lambda_{13}}{\lambda_{14}}\right)} \quad (4.14)$$

2. La deuxième étape consiste en une **première évaluation du coefficient d'absorption du dioxyde d'azote** dans le canal à 384.26 nm ( $\lambda_1$ ). En effet, comme le montre la figure 4.7, à cette longueur d'onde,  $\text{NO}_2$  absorbe fortement et l'ozone très peu, son influence peut donc, dans un premier temps être négligé. Le coefficient d'extinction total dans ce canal est donc la somme du coefficient d'absorption du dioxyde d'azote  $k_{\text{NO}_2}^{abs}(\lambda_1)$  et du coefficient d'extinction des aérosols  $k_{aer}^{ext}(\lambda_1)$ . Ce dernier est évalué à partir du coefficient d'Angström et du coefficient d'extinction des aérosols à 1545 nm ( $\lambda_{14}$ ).

$$k_{\text{NO}_2}^{abs}(\lambda_1) = k(\lambda_1) - k_{aer}^{ext}(\lambda_{14}) \left(\frac{\lambda_1}{\lambda_{14}}\right)^{-\alpha} \quad (4.15)$$

3. Une **première estimation du coefficient d'absorption de l'ozone** est alors calculée dans le canal à 601 nm ( $\lambda_9$ ) :

$$k_{\text{O}_3}^{abs}(\lambda_9) = k(\lambda_9) - k_{aer}^{ext}(\lambda_{14}) \left(\frac{\lambda_9}{\lambda_{14}}\right)^{-\alpha} - k_{\text{NO}_2}^{abs}(\lambda_1) \left(\frac{\sigma_{\text{NO}_2}^{abs}(\lambda_9)}{\sigma_{\text{NO}_2}^{abs}(\lambda_1)}\right) \quad (4.16)$$

où  $\sigma_{\text{NO}_2}^{abs}(\lambda_i)$  est la section efficace d'absorption du dioxyde d'azote à la longueur  $\lambda_i$ .

4. **Le coefficient d'absorption de l'ozone est ensuite calculé dans les canaux entre 439.6 et 449.9 nm** ( $\lambda_2$  à  $\lambda_7$ ).

Certains de ces canaux présentent une forte absorption de  $\text{NO}_2$  (on), c'est le cas de  $\lambda_2$  et de  $\lambda_5$ , les autres moins ( $\text{NO}_2$  off). Une méthode différentielle entre un

canal 'on' et un canal 'off' proche est alors mise en œuvre pour calculer le  $\text{NO}_2$  en considérant la contribution des aérosols identique dans les deux canaux. Plusieurs possibilités ont été testées, les différences observées sur le profil vertical de dioxyde d'azote sont très faibles. Le choix s'est ainsi porté sur les canaux à 439.6 ( $\lambda_2$ ) et 442.42 nm ( $\lambda_3$ ) :

$$k_{\text{NO}_2}^{\text{abs}}(\lambda_2) = k(\lambda_2) - k_{\text{aer}}^{\text{ext}}(\lambda_2) - k_{\text{O}_3}^{\text{abs}}(\lambda_9) \left( \frac{\sigma_{\text{O}_3}^{\text{abs}}(\lambda_2)}{\sigma_{\text{O}_3}^{\text{abs}}(\lambda_9)} \right) \quad (4.17)$$

$$k_{\text{NO}_2}^{\text{abs}}(\lambda_3) = k(\lambda_3) - k_{\text{aer}}^{\text{ext}}(\lambda_3) - k_{\text{O}_3}^{\text{abs}}(\lambda_9) \left( \frac{\sigma_{\text{O}_3}^{\text{abs}}(\lambda_3)}{\sigma_{\text{O}_3}^{\text{abs}}(\lambda_9)} \right) \quad (4.18)$$

On considère ici que les coefficients d'extinction des aérosols à ces deux longueurs d'onde sont identiques. La différence entre les deux équations ci-dessus fournit ainsi le coefficient d'absorption du dioxyde d'azote à 439.6 nm.

5. **Le coefficient d'absorption de l'ozone à 601 nm peut être ajusté** en reprenant l'équation 4.16 avec le coefficient d'absorption du dioxyde d'azote calculé à l'étape précédente.
6. La contribution de l'ozone dans le canal à 1022 nm peut alors être prise en compte pour ajuster le coefficient d'extinction des aérosols dans ce canal et ainsi **améliorer l'estimation du coefficient d'Angström**.
7. On répète l'étape 4 pour **ajuster le coefficient d'absorption du dioxyde d'azote à 439.6 nm** et on en déduit sa concentration en divisant le coefficient d'absorption par la section efficace approprié.
8. On répète l'étape 5 pour **ajuster le coefficient d'absorption de l'ozone à 601 nm** et on en déduit également sa concentration en divisant le coefficient d'absorption par la section efficace appropriée.
9. On calcule les **coefficients d'extinction des aérosols dans chaque canal** en soustrayant aux coefficients d'extinction totaux les contributions du dioxyde d'azote et de l'ozone calculées aux étapes 7 et 8.
10. Un polynôme du second degré est introduit pour **modéliser les variations spectrales des coefficients d'extinction des aérosols** [Brogniez and Lenoble, 1988] :

$$\ln k_{\text{aer}}^{\text{ext}}(\lambda) = \ln k_{\text{aer}}^{\text{ext}}(1545) - \alpha \ln \left( \frac{\lambda}{1545} \right) - \beta \left[ \ln \left( \frac{\lambda}{1545} \right) \right]^2 \quad (4.19)$$

Une procédure de résolution par moindre carré est mise en œuvre pour déterminer les coefficients  $\alpha$  et  $\beta$  et les coefficients d'extinction des aérosols sont recalculés à partir de cette équation.

11. On répète alors l'étape 4 sans considérer que les coefficients d'extinction à 439.6 et à 442.42 égaux et **on en déduit la concentration du dioxyde d'azote**.
12. De même, l'étape 5 est réitérée en utilisant le coefficient d'extinction des aérosols à 601 nm calculé à l'étape 10. **La concentration en ozone est ainsi calculée**.
13. **Les aérosols sont à nouveau calculés** en otant les contributions de l'ozone et du dioxyde d'azote préalablement calculées. Le coefficient d'extinction des aérosols dans la bande du dioxyde d'azote est calculé à 448.5 nm en moyennant les coefficients obtenus à 448.05 nm (canal  $\lambda_5$ ) et 448.99 nm (canal  $\lambda_6$ ).

La figure 4.8 présente un exemple des résultats de notre inversion pour un événement SAGE III ayant eu lieu le 16 septembre 2004 dans l'hémisphère sud ( $53.6^\circ$  S,  $82^\circ$  E). Les incertitudes seront discutées dans le paragraphe suivant, elles ne sont donc pas représentées sur cette figure. Pour les profils aérosol, la gamme d'altitude choisie s'étend de 10 à 30 km. Au-delà de 30 km, les aérosols sont si peu nombreux que leur détection devient très difficiles. En-deça de 10 km, le signal peut être éventuellement perturbé par la présence de nuage haut.

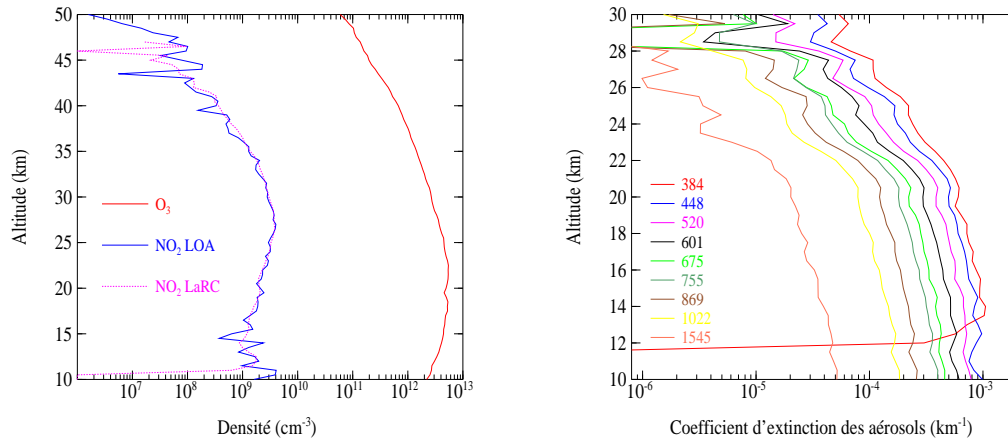


FIG. 4.8 – A gauche : profils verticaux des concentrations en  $O_3$  (en rouge) et en  $NO_2$  (déduits de l'algorithme du LOA en bleu et de celui du LaRC en rose). A droite : profils verticaux des coefficients d'extinction des aérosols.

Pour cet événement, on constate que le profil de concentration en dioxyde d'azote (en bleu sur la figure 4.8) présente des oscillations. Ces oscillations sont présentes sur l'intégralité des profils de concentration en dioxyde d'azote déduites de l'algorithme d'inversion des transmissions de SAGE III développé au LOA. Le produit officiel du LaRC (en rose) ne présente pas de telles oscillations (entre 12 et 40 km). Après maintes investigations destinées à résoudre ce problème, il s'avère que ce problème n'est pas dû à notre algorithme mais à l'atténuateur de SAGE III. En effet, celui-ci n'est pas rigoureusement neutre spectralement et plus spécialement dans la bande du dioxyde d'azote (de 439.6 nm à 449.9 nm). Pour pallier ce problème, l'équipe du LaRC applique un lissage triangulaire sur 2 km à la base à l'épaisseur optique d'absorption du dioxyde d'azote le long de la ligne de visée (issue de l'inversion spectrale) avant d'effectuer l'inversion spatiale. L'atténuateur n'étant pas neutre dans la bande du dioxyde d'azote, le coefficient d'extinction des aérosols à ces longueurs d'onde peut également être affecté par ce problème. Ainsi, nous avons décidé de procéder à un lissage en altitude des transmissions dans ces canaux. Le lissage est effectué sur 2 km par une fonction triangulaire, comme pour l'algorithme du LaRC. Les profils de concentration de  $NO_2$  ainsi retrouvés présentent moins d'oscillations. La figure 4.9 montre le même profil de  $NO_2$  que celui de la figure 4.8 et celui obtenu après lissage des transmissions dans la bande du dioxyde d'azote (toujours sans incertitudes).



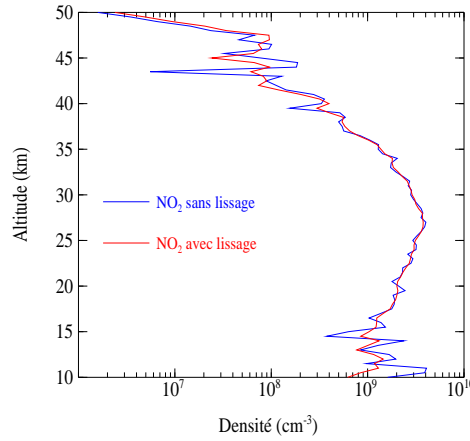


FIG. 4.9 – Profils verticaux de concentration en  $\text{NO}_2$  avec et sans lissage des transmissions dans la bande du dioxyde d'azote.

#### 4.1.1.5 Estimation des incertitudes

Le calcul de l'incertitude sur les profils verticaux des produits SAGE III se fait en propageant les incertitudes initiales, c'est-à-dire celles sur la transmission, sur l'altitude tangente (liées à la réfraction), sur la température et sur les sections efficaces. A chaque étape de calcul, les incertitudes sont propagées. Comme on l'a vu dans le paragraphe 4.1.1.4, il existe de nombreux calculs intermédiaires rendant la propagation des incertitudes délicates et fastidieuses.

Nous avons alors utilisée une alternative : les incertitudes seront estimées à l'aide d'une procédure de Monte Carlo. A partir des transmissions tangentes mesurées et de leurs incertitudes, nous calculons les épaisseurs optiques tangentes  $\delta(\lambda, Z_t)$  et leurs incertitudes  $\Delta\delta$ . Nous considérons à chaque altitude une répartition gaussienne des épaisseurs optiques tangentes centrées autour de  $\delta(\lambda, Z_t)$  avec une largeur à mi-hauteur  $\Delta\delta$ . Nous définissons ainsi un espace des épaisseurs optiques tangentes possibles. Plutôt que de procéder à l'inversion à partir de  $\delta(\lambda, Z_t)$ , nous choisissons aléatoirement, pour chaque longueur d'onde, des épaisseurs optiques tangentes  $\delta^k(\lambda, Z_t)$  dans cet espace. Ces nouvelles épaisseurs optiques tangentes constituent le nouveau point de départ de notre algorithme. Nous prenons en compte de la même façon l'incertitude sur la température, celles sur les sections efficaces d'absorption utilisées (2% pour  $\text{O}_3$  et  $\text{NO}_2$ ) et celle sur l'altitude tangente ( $\pm 50$  m). Nous effectuons ainsi un grand nombre ( $n$ ) de tirages successifs de quintuplet ( $\delta^k, T^k, Z_t^k, \sigma_{\text{O}_3}^k, \sigma_{\text{NO}_2}^k$ ) et donc  $n$  inversions successives. A l'issue de ces  $n$  inversions, nous calculons les moyennes et écarts-types qui nous fournissent les produits finaux et leurs incertitudes. Après différents essais, nous avons choisi  $n=250$ , cela constitue un compromis entre temps de calcul et exploration suffisante des espaces, en effet les profils obtenus sont alors très proches de ceux obtenus après 2000 tirages (les différences entre ces profils n'excèdent pas 2%). Les figures 4.10 présentent les profils verticaux des incertitudes relatives pour les différents produits obtenus pour l'événement de la figure 4.8.

On constate que l'incertitude sur la restitution de la concentration en ozone est inférieure à 6% entre 12 et 50 km. Pour le dioxyde d'azote, entre 20 et 35 km, l'incertitude est comprise entre 10 et 15%. En dehors de cette gamme d'altitude, les incertitudes augmentent, atteignant près de 100% à 10 et 50 km. Pour les coefficients d'extinction des

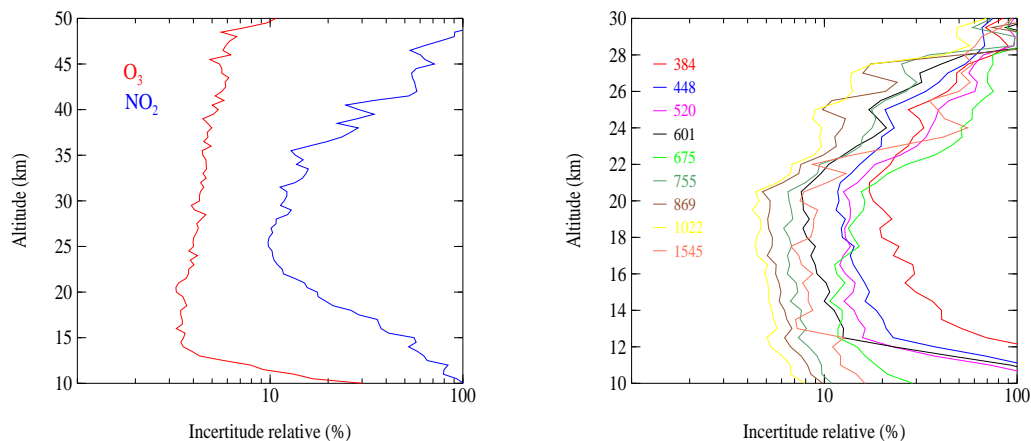


FIG. 4.10 – Profils verticaux des incertitudes relatives évaluées par la méthode de Monte Carlo pour l'événement SAGE III de la figure 4.8. A gauche : incertitudes sur les concentrations d'ozone et de dioxyde d'azote. A droite : incertitudes sur les coefficients d'extinction des aérosols.

aérosols, les incertitudes relatives entre 14 et 22 km sont comprises entre 4 et 30% suivant la longueur d'onde. Globalement, à une altitude donnée, l'incertitude relative décroît quand la longueur d'onde augmente sauf pour le canal à 675 nm et celui à 1545 nm. Au-dessus de 22 km, les incertitudes augmentent, atteignant près de 100% à 30 km. Ces fortes incertitudes sont imputables à la très faible quantité d'aérosol au-dessus de 30 km rendant leur détection très difficile. A basse altitude, les fortes incertitudes observées quel que soit le produit s'expliquent par l'augmentation des trajets optiques à basses altitudes. Pour l'intégralité des profils SAGE III testées, les incertitudes sont du même ordre que celles observées sur la figure 4.10. Notons également que les incertitudes sur les produits finaux du LaRC sont du même ordre que celles que nous trouvons.

## 4.1.2 Etude de sensibilité de l'algorithme

### 4.1.2.1 Sensibilité spectroscopique

Les sections efficaces choisies pour effectuer notre inversion sont identiques à celles utilisées par le LaRC : Bogumil et al. [2003] pour l'ozone et Harder et al. [1997] pour le dioxyde d'azote. Elles sont disponibles à différentes températures. Cependant, l'algorithme du LaRC tient compte de la variation de ces sections efficaces avec la température (en fonction de l'altitude) alors que, pour alléger notre algorithme, nous avons considéré les sections efficaces constantes, prises à une température de référence caractéristique de la température moyenne de la stratosphère (voir tableau 4.2). Ces jeux de données étant disponibles à d'autres températures, nous allons étudier dans ce paragraphe l'influence de la température des jeux de sections efficaces sur les produits obtenus.

Nous avons regroupé les sections efficaces par paire selon leur température et nous leur avons attribué un qualificatif pour simplifier notre propos (voir le tableau 4.2).

Nous avons alors effectué l'inversion en utilisant ces différents jeux de sections efficaces et calculer les différences relatives selon l'équation suivante :

Ozone	NO <sub>2</sub>	Qualificatif
202 K	217 K	Basse température
223 K	230 K	Référence
243 K	238 K	Moyenne température
293 K	293 K	Haute température

TAB. 4.2 – Températures des jeux de sections efficaces utilisés.

$$\text{DIFF} = 200 * \frac{PROD_{qual} - PROD_{ref}}{PROD_{qual} + PROD_{ref}} \quad (4.20)$$

où  $PROD_{qual}$  représente le produit considéré calculé à basse, moyenne ou haute température (voir tableau 4.2) et  $PROD_{ref}$  celui calculé aux températures de références (celles utilisées dans notre algorithme). Il s'avère que pour le calcul des concentrations en ozone, les différences relatives (non présentées) sont inférieures à 1% en valeurs absolues. Nous concluons alors que le calcul de la concentration en ozone n'est pas sensible à la température du jeu de sections efficaces utilisé. Pour les autres produits (dioxyde d'azote et aérosol), les différences sont un peu plus importantes. La figure 4.11 présente les différences relatives obtenues pour ces produits pour un événement SAGE III choisi aléatoirement. Nous avons effectué ce même travail sur une dizaine d'autres événements SAGE III et nos conclusions sont, pour chaque événement étudié, les mêmes. Nous excluons de cette étude les coefficients d'extinction à 1020 nm et à 1545 nm. En effet, l'absorption du dioxyde d'azote est nulle dans ces deux canaux et celle de l'ozone est nulle à 1545 nm et très faible à 1020 nm.

Pour NO<sub>2</sub>, entre 10 et 27 km et entre 40 et 50 km, les différences relatives sont de l'ordre de -10 à -5% entre basse et référence, entre 5 et 10% entre moyenne et référence et entre 10 et 20% entre haute et référence. Ainsi, l'utilisation de sections efficaces à température constante influe la concentration en dioxyde d'azote de -10 à 10% (on peut négliger les résultats à haute température, car elles sont rarement atteintes dans la stratosphère).

Pour la restitution des coefficients d'extinction des aérosols, on constate que l'utilisation de sections efficaces à basses et moyennes températures influent faiblement les résultats quelles que soient les longueurs d'onde (différences relatives entre -10 et 10% en-dessous de 26 km). En particulier, l'utilisation des sections efficaces basses températures implique seulement une différence relative de l'ordre de 0 à 5% en dessous de 26 km.

Globalement, il est raisonnable d'utiliser des sections efficaces constantes en fonction de la température, celles-ci influant peu les résultats de notre algorithme sauf pour la concentration en dioxyde d'azote. Néanmoins, dans un cas idéal, l'algorithme devrait être conçu de manière à utiliser à chaque niveau, les sections efficaces de l'ozone et du dioxyde d'azote correspondant à la température du niveau. Cependant, les banques de données spectroscopiques ne fournissent aujourd'hui des jeux de sections efficaces qu'à certaines températures (voir le paragraphe 2.3.4). Aucune relation mathématique fiable exprimant les variations des sections efficaces d'absorption de l'ozone avec la température et la pression n'existe. Néanmoins Vandaele et al. [2003] ont établi des relations simples modélisant les variations de la section efficace de NO<sub>2</sub> avec la température et la pression. Nous avons gardé dans notre algorithme d'inversion actuel des sections efficaces calculées à température constante. Aussi, la procédure de Monte Carlo que l'on utilise prend en compte 2% d'erreurs sur ces sections efficaces. Notons d'ailleurs que l'algorithme d'in-

version de l'instrument MAESTRO utilise également des sections efficaces à température constante.

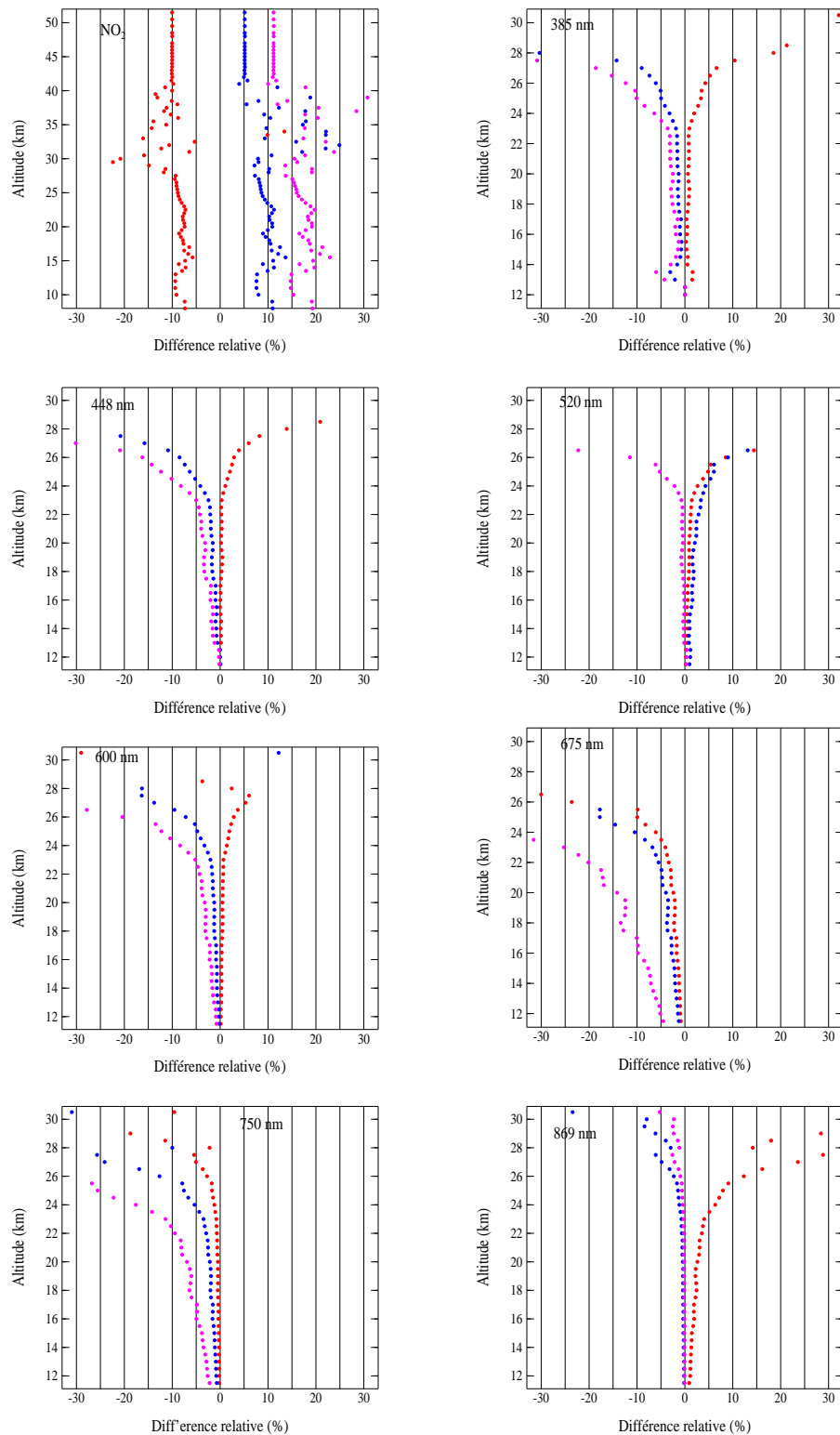


FIG. 4.11 – Profils verticaux des différences relatives entre les produits SAGE III (produits indiqués sur chaque figure) calculés avec les sections efficaces à basse (en rouge), moyenne (en bleu) et haute température (en rose) et ceux calculés avec les sections efficaces de référence.

### 4.1.2.2 Coefficient de diffusion moléculaire

La diffusion Rayleigh est inversement proportionnelle à la puissance quatrième de la longueur d'onde. Elle est d'autant plus importante que la longueur d'onde est courte. La figure 4.12 montre les profils des épaisseurs optiques tangentes de diffusion moléculaire dans les neuf canaux SAGE III calculées selon la formulation de [Bucholtz, 1995] pour l'événement SAGE III qui a été utilisé sur la figure 4.2 du paragraphe 4.1.1.2.

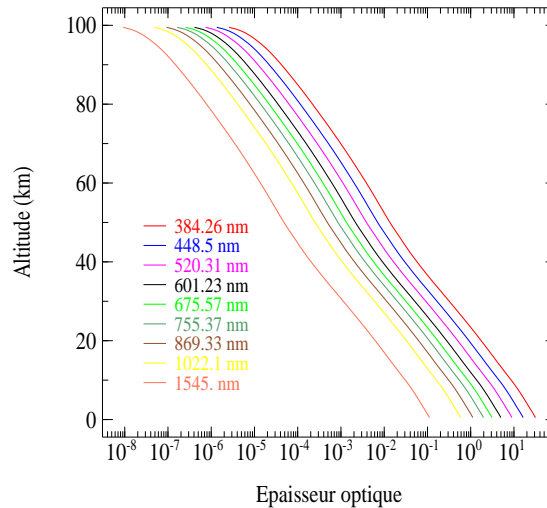


FIG. 4.12 – Profils verticaux des épaisseurs optiques tangentes de diffusion moléculaire calculées selon Bucholtz [1995] le long des lignes de visée d'un événement SAGE III choisi aléatoirement.

Le paragraphe 2.3.3.1 a présenté 3 méthodes de calcul de l'indice de réfraction. Celui-ci intervient dans le calcul de la réfraction ainsi que dans le calcul de la section efficace de diffusion moléculaire. Les profils verticaux obtenus selon les 3 calculs différents ne diffèrent que très peu. La figure 4.13 présente les rapports entre les épaisseurs optiques tangentes de diffusion Rayleigh calculées selon chacune des trois méthodes et la moyenne des trois épaisseurs optiques à 20 km en fonction de la longueur d'onde. On s'aperçoit que les différences sont très infimes. Pour les longueurs d'onde inférieures à 675 nm, l'épaisseur optique 'Bodhaine' est supérieure à l'épaisseur optique 'Bucholtz', elle-même étant quasiment identique à l'épaisseur optique 'Edlen'. Les plus grandes différences sont dans le canal à 385 nm où l'épaisseur optique 'Bodhaine' ne diffère que de 0.28%, celle calculée selon Bucholtz de -0.13% et celle calculée selon Edlen de -0.15% par rapport à la moyenne des épaisseurs optiques calculées selon les 3 méthodes. Les différences calculées deviennent même inférieures à 0.1% en valeur absolue au-delà de 450 nm. Pour les longueurs d'onde supérieures à 675 nm, l'épaisseur optique 'Bodhaine' devient la plus petite, les 2 autres restant sensiblement identiques. Aux niveaux inférieurs, où la densité moléculaire est plus importante, les différences entre les épaisseurs optiques Rayleigh calculées selon les 3 méthodes sont du même ordre.

La façon de calculer l'indice de réfraction n'a donc qu'une importance mineure. Notre choix s'est porté sur le calcul selon Bucholtz [1995] car l'algorithme d'inversion officiel de SAGE III utilise cette formulation. Ainsi, dans notre étude de validation entre

les produits SAGE III LOA et les produits officiels, les éventuelles différences ne pourront être imputées aux choix des sections efficaces de diffusion moléculaire.

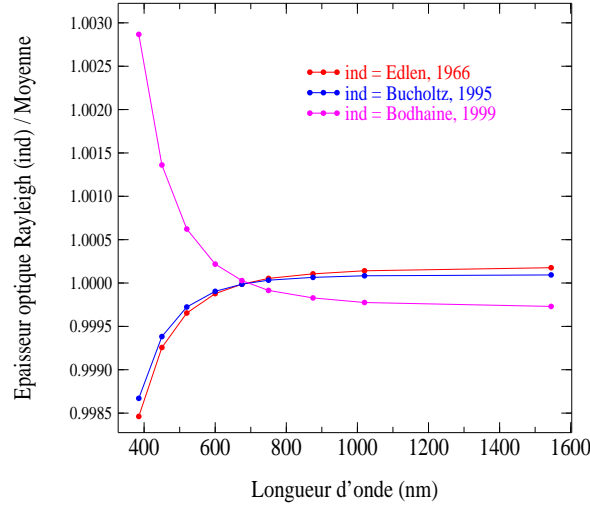


FIG. 4.13 – Variations spectrales des rapports entre les épaisseurs optiques Rayleigh calculées avec la formulation de Edlen [1966] (en rouge), de Bucholtz [1995] (en bleu) et de Bodhaine et al. [1999] et la moyenne des épaisseurs optiques Rayleigh calculées avec ces 3 formulations.

## 4.2 Validation avec les produits du LaRC

### 4.2.1 Description de l'algorithme du LaRC

L'algorithme mis en place par l'équipe du LaRC n'utilise pas la même approche que celle du LOA [Rind and McCormick, 2002]. Une des différences majeures est l'ordre des inversions. En effet, l'inversion spectrale est effectuée avant l'inversion spatiale. A une altitude tangente donnée, l'épaisseur optique totale le long de la ligne de visée s'écrit :

$$\delta_{tot}(\lambda) = \delta_{ray}(\lambda) + \delta_{aer}(\lambda) + \sum_{i=1}^N \delta_{gaz_i}(\lambda) \quad (4.21)$$

Avec  $\delta_{ray}$ , l'épaisseur optique de diffusion moléculaire le long de la ligne de visée,  $\delta_{aer}$ , l'épaisseur optique d'extinction des aérosols le long de la ligne de visée et  $\delta_{gaz_i}$  l'épaisseur optique d'absorption du gaz  $i$  le long de la ligne de visée ( $N$  peut varier de 1 à 2 selon le canal, voir tableau 4.1).

La première étape de l'algorithme est le calcul de l'épaisseur optique Rayleigh. Ce calcul est effectué en utilisant le formalisme de Bucholtz [1995] et les profils météorologiques NCEP.

La deuxième étape est la détermination des profils de densités le long de la ligne de visée de l'ozone et du dioxyde d'azote. Pour ce faire, une régression linéaire multiple dans les canaux 433 - 450 nm et 560 - 622 nm est effectuée pour obtenir les épaisseurs optiques d'absorption de ces 2 gaz, dans ces canaux, le long de la ligne de visée. Comme on l'a

signalé au paragraphe 4.1.1.4, pour tenir compte des problèmes de neutralité spectrale de l'atténuateur dans les canaux autour de 450 nm, un lissage triangulaire en altitude est appliqué sur les épaisseurs optiques d'absorption du NO<sub>2</sub>. Les épaisseurs optiques d'absorptions de ces gaz sont alors calculées dans chaque canal en utilisant les sections efficaces appropriées (Bogumil et al. [2003] pour O<sub>3</sub> et Harder et al. [1997] pour NO<sub>2</sub>). Les épaisseurs optiques d'extinction des aérosols dans chaque canal sont alors considérées comme étant les résidus dans la procédure de régression linéaire multiple. Une approche alternative a également été mise en place pour déterminer un autre profil vertical de concentration en ozone : il s'agit d'une méthode par moindres carrés. Ce produit sera repéré par l'indice 'aer', le produit ozone issu de la régression linéaire multiple étant indicé 'mlr' [Wang et al., 2006]. Notons qu'un troisième produit ozone est issu de l'algorithme officiel : il est nommé ozone mésosphérique et est issue du canal ultra-violet à 290 nm. L'inversion spatiale choisie pour l'obtention des profils verticaux est la méthode de Chahine modifiée [Chahine, 1972, Chu et al., 1989].

## 4.2.2 Comparaisons

L'étude de validation des produits SAGE III est faite en 2 étapes. La première est une comparaison basée sur deux événements (un dans l'hémisphère nord, l'autre au sud) et la deuxième est une étude statistique basée sur 2 échantillons de 2000 événements chacun choisi aléatoirement (les 2 hémisphères sont également distingués). La distinction des deux hémisphères est effectuée dans le but de mettre en évidence d'éventuelles différences inter-hémisphériques. En effet, les mesures de SAGE III au coucher et au lever de soleil se distinguent par le fait que l'instrument est, pour le coucher, à haute température et pour le lever à basse température (il sort de l'ombre de la Terre). Il peut en découler des comportements différents du détecteurs selon le type d'événement. La gamme d'altitude utilisée pour la comparaison des espèces gazeuses s'étend de 10 à 50 km et pour les aérosols de 10 à 30 km (au-delà de 30 km, les aérosols étant trop peu nombreux pour assurer une détection fiable). Les différences relatives mentionnées dans ce paragraphe sont toutes calculées selon l'expression suivante :

$$\text{DIFF} = 200 * \frac{\text{LaRC} - \text{LOA}}{\text{LaRC} + \text{LOA}} \quad (4.22)$$

où LaRC représente la grandeur considérée (concentration en ozone ou en dioxyde d'azote ou coefficient d'extinction aérosol) issue de l'algorithme officiel et LOA est celle issue de l'algorithme du LOA.

### 4.2.2.1 Profils individuels

L'événement choisi dans l'hémisphère nord a eu lieu le 13 mars 2004 à 15h36 (TU). Il s'agit de l'orbite 1126820. Le point sub tangent se situe à 75° nord et 28.2° est (au-dessus de la mer de Barents). Le profil vertical de température associé à cet événement (voir figure 4.14) montre une structure assez compliquée avec des températures atteignant 198 K à 33 km. La tropopause thermique se situe à 9.5 km (216 K) et on note une inversion de température à 33 km.

Dans l'hémisphère sud, l'événement utilisé est le numéro 1698710. Il est situé à 58° sud et



76° ouest (au sud du cap Horn). Cette mesure a été effectuée le 5 mai 2005 à 21h (TU). La tropopause est située à 10.6 km à une température de 212 K (voir figure 4.14). Au-dessus de cette altitude, le profil augmente sur 1 km avant de décroître à nouveau jusque 24 km puis de réaugmenter jusque la stratopause (vers 50 km).

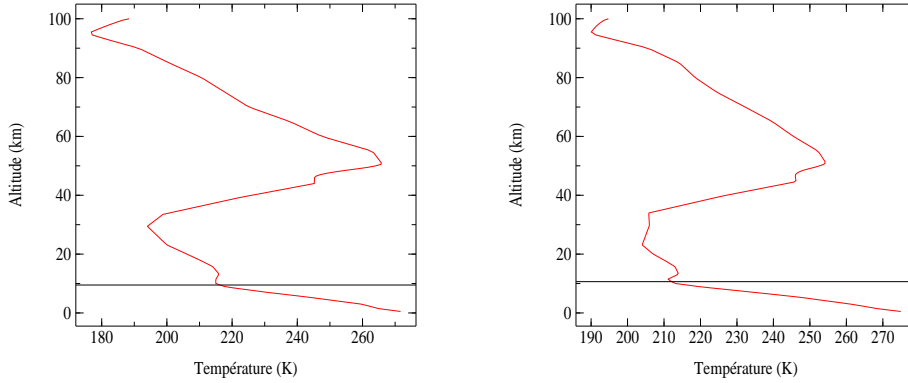


FIG. 4.14 – Profils de température associés aux événements 1126820 (à gauche) et 1698710 (à droite). Les lignes noires correspondent à l'altitude de la tropopause thermique : 9.5 km pour 1126820 et 10.6 km pour 1698710

### L'ozone :

Le profil d'ozone issu de l'algorithme du LOA (qu'on notera par commodité  $O_3^{loa}$ ) est ici comparé aux 2 profils d'ozone issus de l'algorithme officiel (notés  $O_3^{mlr}$  et  $O_3^{aer}$ ) pour les 2 événements susmentionnés. La figure 4.15 présente pour chaque événement, les 3 profils verticaux de concentration en ozone et les différences relatives associées.

Pour les 2 événements, les profils issus de l'algorithme du LOA sont globalement en très bon accord avec les 2 profils du LaRC.

Pour l'événement de l'hémisphère nord (1126820), les différences relatives entre l' $O_3^{loa}$  et l' $O_3^{mlr}$  sont inférieures à 2% en valeurs absolues entre 22 et 36 km. Celles entre l' $O_3^{loa}$  et l' $O_3^{aer}$  sont du même ordre mais jusqu'à une altitude plus élevée (40 km). Au-dessus de 36 km, l'accord entre l' $O_3^{loa}$  et l' $O_3^{aer}$  est meilleur que l'accord entre l' $O_3^{loa}$  et l' $O_3^{mlr}$ . Nous ne discuterons pas de la réalité physique des structures observées entre 15 et 22 km, cela sort de notre propos. En dessous de 22 km, les différences relatives avec les 2 profils LaRC sont sensiblement identiques et comprises entre -10 et +10%. Les fortes barres d'incertitude pour le produit LOA en-dessous de 11 km sont dues à la basse altitude (longs trajets optiques) et à la proximité de la troposphère (la tropopause est à 9.5 km).

Pour l'événement au sud, les conclusions sont approximativement les mêmes que celles pour l'événement au nord : l'accord avec les 2 profils LaRC est très bon entre 20 et 34 km pour  $O_3^{mlr}$  et entre 20 et 40 km pour  $O_3^{aer}$ . Au-dessus de 34 km, l'accord avec  $O_3^{aer}$  est meilleur. Par contre, en dessous de 20 km, l'accord avec  $O_3^{mlr}$  est légèrement meilleur. On retrouve également de fortes incertitudes à basses altitudes (tropopause à 10.6 km).

Au vu de ces 2 comparaisons individuelles, les 2 algorithmes semblent générer des profils verticaux d'ozone sensiblement identiques. A haute altitude (au-delà de 35 km), les différences entre  $O_3^{loa}$  et  $O_3^{aer}$  sont plus faibles que celles entre  $O_3^{loa}$  et  $O_3^{mlr}$ . Aucune particularité interhémisphérique ne peut être ici mise en évidence.

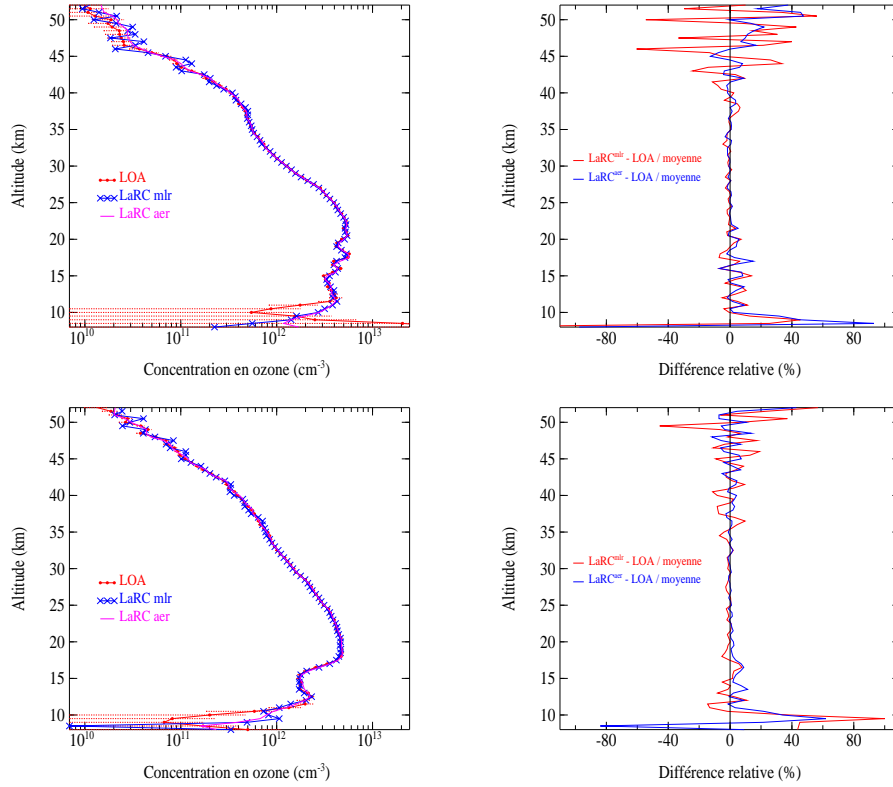


FIG. 4.15 – Profils verticaux de concentrations en ozone (à gauche) associés aux événements 1126820 (en haut) et 1698710 (en bas). En rouge, le profil issu de l’algorithme du LOA, en bleu, le profil LaRC ‘mlr’ et en rose, le profil LaRC ‘aer’. Par souci de clarté, seul les incertitudes LOA sont représentées. Les profils verticaux des différences relatives associées sont représentés dans les panneaux de droite.

### Le dioxyde d’azote :

La particularité de la comparaison entre les profils des concentrations en dioxyde d’azote issues des algorithmes du LOA et du LaRC réside dans le fait que le lissage triangulaire en altitude n’est pas effectué sur la même grandeur physique. Pour le LOA, ce lissage est fait sur le profil de transmission atmosphérique aux longueurs d’onde concernées (autour de 450 nm) avant l’inversion spatiale et spectrale. Pour le LaRC, il est effectué entre leur inversion spectrale et leur inversion spatiale, sur le profil vertical de l’épaisseur optique tangente d’absorption du dioxyde d’azote le long de la ligne de visée. Les figures 4.16 présentent les résultats de ces comparaisons.

Pour l’événement au nord (1126820), le profil vertical du LOA présente encore quelques oscillations malgré le lissage effectué sur toute la gamme d’altitude étudiée. En dessous de 13 km, le profil du LaRC présente de fortes oscillations et celui du LOA des valeurs très faibles. Les incertitudes sont d’ailleurs très importantes à ces bas niveaux proches de la tropopause. Les 2 algorithmes semblent présenter certains problèmes à basses altitudes pour la restitution du  $\text{NO}_2$ . Entre 13 et 40 km, le profil du LaRC est relativement lisse alors que le profil du LOA est plus variable. Les différences relatives sur cette gamme d’altitude sont comprises entre -50 et +50%. Au regard du profil de température (figure 4.14), on s’aperçoit qu’entre 20 et 35 km, les températures sont inférieures à 210 K. Ainsi, l’utilisation de sections efficaces à basse température (cf para-

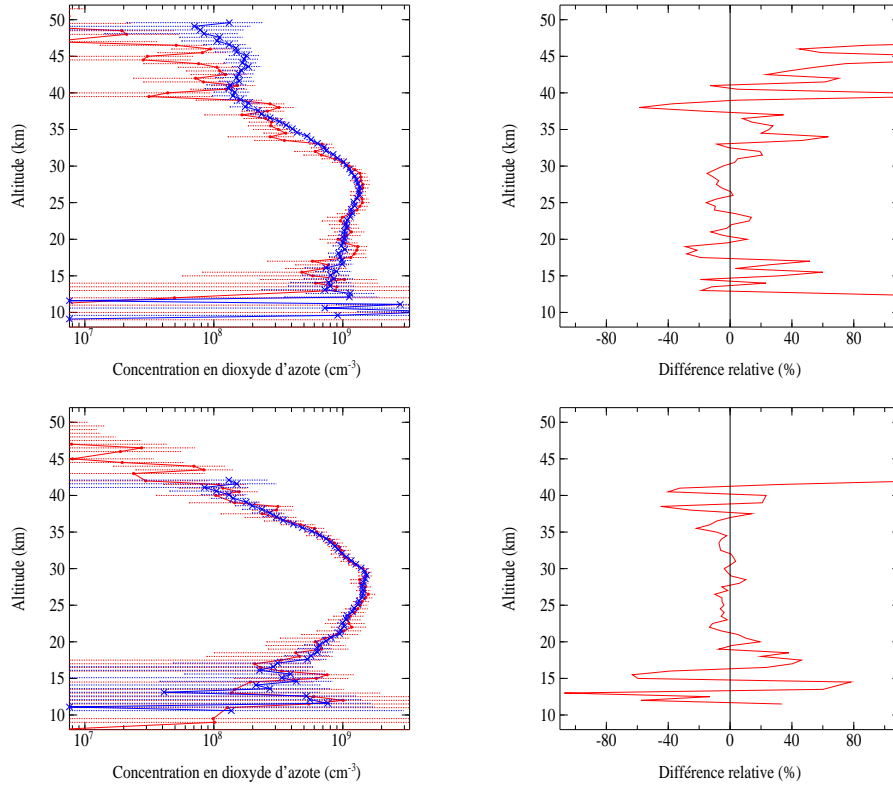


FIG. 4.16 – Identique à la figure 4.15 mais pour les profils verticaux de concentration en  $\text{NO}_2$  (en rouge : LOA et en bleu : LaRC) et avec les barres d'incertitude des concentrations du LaRC.

graphe 4.1.2.1) rendrait les concentrations restituées par l'algorithme du LOA 10% plus faible (approximativement) que celles trouvées avec les sections efficaces utilisées ici. Cela a pour effet d'augmenter les différences relatives d'approximativement 10 points et ainsi de les améliorer à certaines altitudes : celles où les différences relatives sont inférieures à -5%. La concentration maximale retrouvée dans la stratosphère par l'algorithme du LOA se situe à 27.5 km et par celui du LaRC à 27 km. Autour de ce maximum, les différences relatives sont les plus faibles : elles sont comprises entre -10 et 20% entre 22 et 32 km et sont plus souvent négatives (c'est à dire  $\text{NO}_2^{\text{larc}} < \text{NO}_2^{\text{loa}}$ ). Au delà de l'altitude de son maxima, la concentration en dioxyde d'azote du LOA diminue globalement (sans tenir compte des oscillations). Le profil du LaRC diminue également après son maximum jusqu'à 40 km puis augmente légèrement jusque 45 km, diminue et augmente très fortement à 49.5 km. C'est à partir de 40 km que les différences relatives augmentent de plus en plus passant de -12% à près de 180% à 47 km.

Le profil vertical du LOA pour l'événement sud est également oscillant sur toute la gamme d'altitude étudiée. Le profil du LaRC présente également des oscillations à basses altitudes (en dessous de 15 km). Ici aussi les températures sont inférieures à 210 K entre 20 et 35 km. Ainsi, sur cette gamme d'altitude, les sections efficaces à basse température devrait être utilisées. Elles réduiraient les concentrations en  $\text{NO}_2$  d'approximativement 10% et augmenteraient les différences relatives de 10 points. Les maxima sont sensiblement atteints à la même altitude pour les 2 algorithmes : 27 et 29 km pour le LOA et le LaRC respectivement. Autour de ces altitudes, les différences relatives sont assez faibles : entre

19 et 38 km, elles s'étendent de -10 à 10% et sont le plus souvent négatives (c'est à dire  $\text{NO}_2^{\text{LaRC}} < \text{NO}_2^{\text{LOA}}$  entre 22 et 28 km). On retrouve également de fortes incertitudes pour les deux produits à proximité de la tropopause.

Il ressort de ces comparaisons que les profils de concentration en dioxyde d'azote issus des 2 algorithmes sont en moins bon accord que les profils d'ozone. A basse altitude, les 2 profils sont très oscillants. Le profil LaRC augmente fortement à haute altitude (49.5 km au nord et 42 km au sud). Les profils du LOA gardent eux certaines oscillations malgré le lissage effectué. Autour des maxima de concentrations, les profils LOA et LaRC sont les plus proches. Il apparaît également qu'à certains niveaux, l'utilisation de sections efficaces adaptées à la température de ces niveaux améliorent la comparaison pour certains de ces niveaux et pas pour d'autres.

### Le coefficient d'extinction aérosols à 385 nm :

Rappelons au préalable que dans le cas des aérosols, le choix des sections efficaces d'absorption de  $\text{NO}_2$  et de  $\text{O}_3$  utilisés n'ont que peu d'influences sur les coefficients d'extinction restitués par notre algorithme quelle que soit la longueur d'onde (voir le paragraphe 4.1.2.1).

Les comparaisons entre les profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols à 385 nm issus des deux algorithmes pour ces deux événements sont présentées sur la figure 4.17.

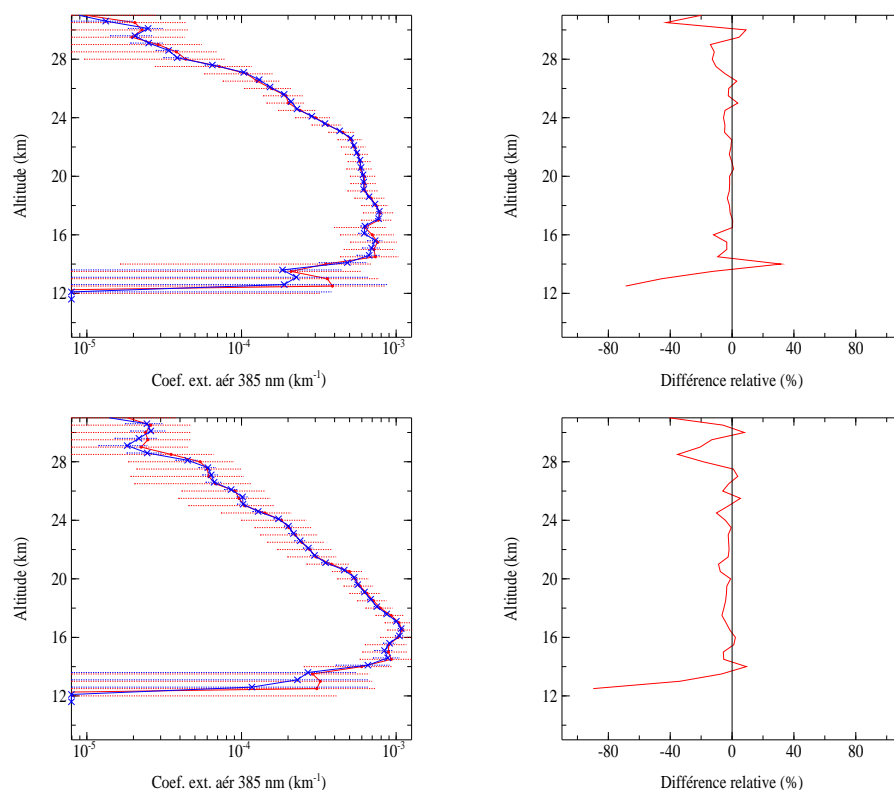


FIG. 4.17 – Identique à la figure 4.16 mais pour les profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols à 385 nm (en rouge : LOA et en bleu : LaRC).

A cette longueur d'onde, l'extinction du rayonnement est due à l'absorption du

dioxyde d'azote et de l'ozone, à l'extinction des aérosols et à la diffusion Rayleigh. Les 2 profils sont en très bon accord entre 15 et 27 km pour l'événement au nord et entre 14 et 28 km pour celui au sud. Les différences relatives n'excèdent pas 6% en valeurs absolues sur ces gammes d'altitude pour ces 2 événements. Les coefficients d'extinction déduits de l'algorithme officiel sont le plus souvent inférieurs à ceux issus de l'algorithme du LOA pour les deux événements. A basse altitude (en dessous de 14 et 15 km pour pour l'événement au sud et au nord respectivement), les différences relatives deviennent fortement négatives (c'est à dire  $k_{aer}^{larc} < k_{aer}^{loa}$ ) atteignant près de -90% pour l'événement au sud et -70% pour l'événement au nord à 12.5 km. Les incertitudes augmentent fortement à basse altitude (en dessous de 14 km au nord et au sud) du fait de l'augmentation du trajet optique à ces altitudes et de la proximité de la tropopause. A haute altitude, les fortes incertitudes sont dues à la très faible quantités d'aérosols à ces niveaux (le coefficient d'extinction est inférieur à  $2.10^{-5} \text{ km}^{-1}$ ).

Pour ces deux événements, les différences relativement importantes observées entre les profils de concentration en dioxyde d'azote ne semblent pas affecter les profils du coefficient d'extinction en aérosols à 385 nm.

### Le coefficient d'extinction aérosols à 448.5 nm :

Tout comme pour le dioxyde d'azote, la restitution du profil vertical d'extinction des aérosols à 448.5 nm souffre du problème de neutralité spectrale de l'atténuateur solaire. Comme nous l'avons vu précédemment, l'algorithme du LOA prend en compte cette particularité en lissant verticalement les profils verticaux de transmissions atmosphériques dans les canaux situés autour de 450 nm. Par contre, l'algorithme du LaRC ne lisse verticalement que le profil vertical de l'épaisseur optique tangente d'absorption du dioxyde d'azote avant séparation spatiale. Ainsi, le LaRC n'effectue aucun lissage sur le profil vertical du coefficient d'extinction des aérosols à 448.5 nm. Les figures 4.18 présentent les profils verticaux d'extinction des aérosols à 448.5 nm des 2 mêmes événements restitués par l'algorithme du LOA avec lissage (en rouge), sans lissage (en rose) et par l'algorithme du LaRC (en bleu). Les différences relatives associées y sont également représentées : en rouge, celle entre le coefficient LaRC et celui du LOA lissé et en bleu, celle entre le coefficient LaRC et celui du LOA non lissé

Pour les 2 événements, le profil LOA non lissé est globalement en bon accord avec le profil LaRC. En effet, cela paraît logique étant donné que ces 2 profils ne sont pas lissés. Les différences relatives concernant l'événement au nord entre le coefficient du LaRC et celui du LOA non lissé sont très faibles : elles sont comprises entre -1 et 5% entre 10 et 26 km. Pour l'hémisphère sud, les différences relatives entre le profil LOA non lissé et le profil LaRC sont également faibles : elles sont comprises entre -15 et 4%. Pour les 2 événements, le coefficient d'extinction LaRC est inférieur à celui du LOA non lissé.

Les comparaisons entre le profil LOA lissé et le profil LaRC sont globalement moins bonnes que celles entre le profil LOA non lissé et celui du LaRC. Pour l'événement au nord comme pour celui au sud, les différences relatives sont comprises entre -30 et 1% entre 10 et 28 km. Elles sont le plus souvent négatives (c'est à dire  $k_{aer}^{larc} < k_{aer}^{loa}$ ) pour ces deux événements.

En dépit du fait que les profils LOA non lissés sont en meilleur accord avec les profils LaRC, pour ces 2 événements, le profil du coefficient d'extinction aérosol à 448.5 nm utilisé par la suite sera le profil LOA lissé pour conserver une cohérence dans l'algorithme du LOA.

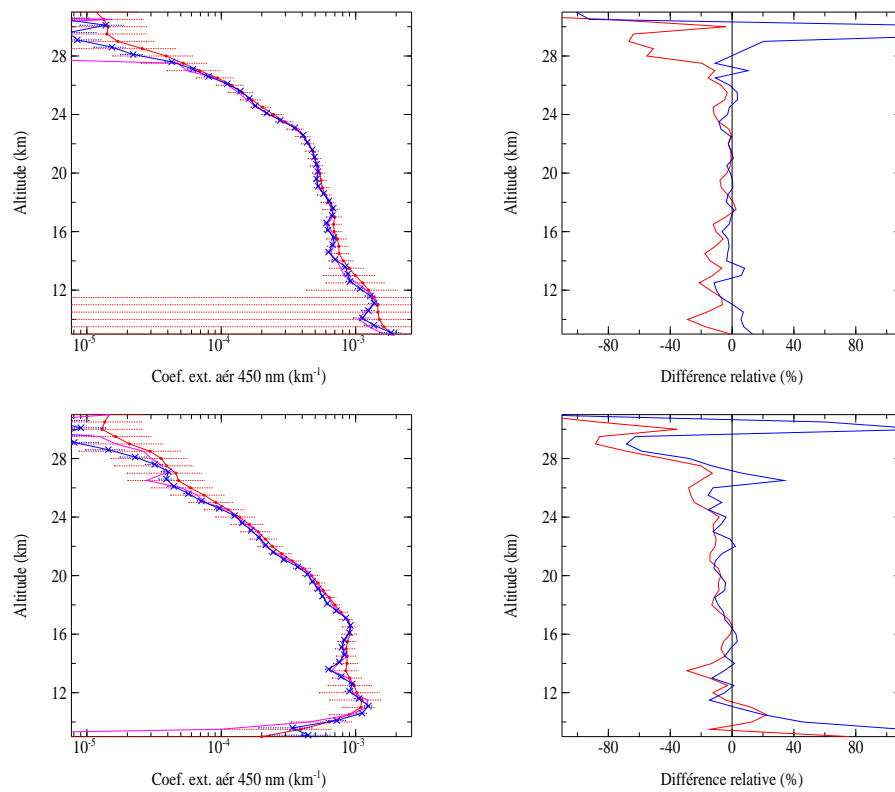


FIG. 4.18 – Profils verticaux du coefficient d’extinction des aérosols à 448.5 nm (à gauche) retrouvés par l’algorithme du LOA avec lissage (en rouge), sans lissage (en rose) et par celui du LaRC (en bleu). Les profils de gauche représentent les différences relatives associées : en rouge, celle entre le coefficient LaRC et celui du LOA lissé et en bleu, celle entre le coefficient LaRC et celui du LOA non lissé.

### Le coefficient d'extinction aérosols à 520 nm :

A 520 nm, le rayonnement est absorbé par l'ozone et par le dioxyde d'azote. Les résultats des comparaisons sont présentés sur les figures 4.19.

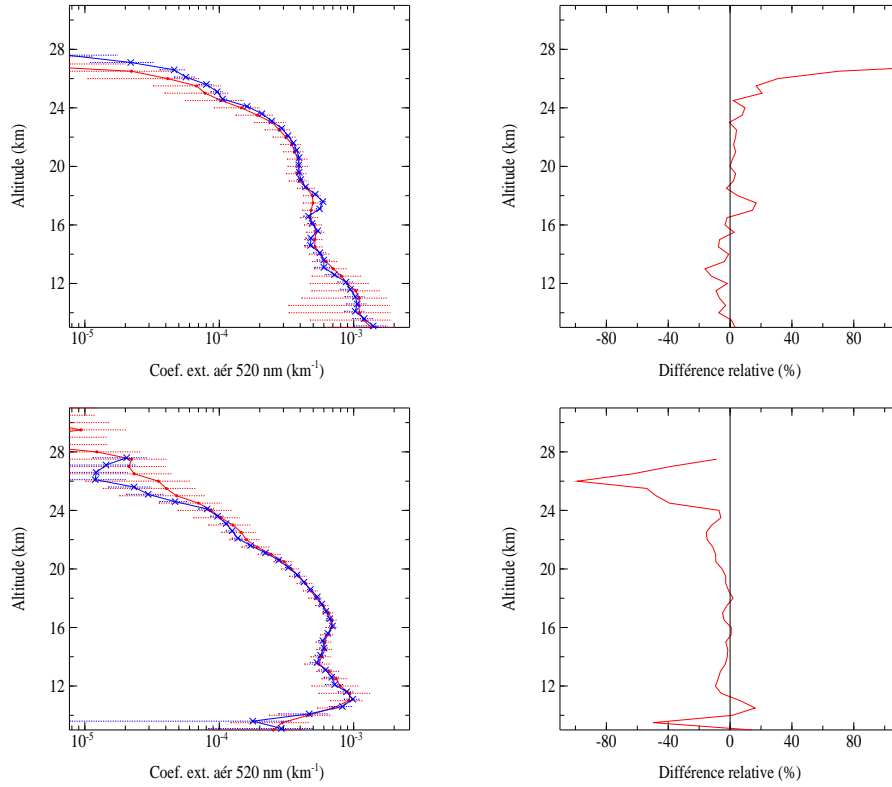


FIG. 4.19 – Identique à la figure 4.16 mais pour les profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols à 520 nm (en rouge : LOA et en bleu : LaRC).

Au nord, en-dessous de 16.5 km, le coefficient d'extinction retrouvé par l'algorithme du LOA est inférieur à celui du LaRC : les différences sont comprises entre -16 et -1%. Au-dessus de 16.5 km, les coefficients du LaRC deviennent supérieurs à ceux du LOA, les différences étant comprises entre 1 et 10% jusqu'à 24 km. Au-delà de 24 km, les différences augmentent fortement atteignant plus de 100% à 27 km.

Au sud, le coefficient d'extinction LaRC est inférieur à celui du LOA excepté à quelques altitudes. Les différences relatives sont comprises entre -15 et -1% (si on excepte les quelques valeurs positives) entre 10 et 24 km. Au-dessus de 24 km, les différences sont plus importantes : elles atteignent près de 100% à 26 km. Il est à noter que l'altitude maximale de détection des aérosols dans le canal à 520 nm pour le LaRC est inférieure à celle du LOA (27.5 km et 40 km).

En se référant uniquement à ces 2 événements, les 2 algorithmes parviennent globalement à restituer un coefficient d'extinction aérosol à 520 nm en bon accord.

### Le coefficient d'extinction aérosols à 601 nm :

Le canal à 601 nm est fortement influencé par l'absorption de l'ozone. C'est à cette lon-

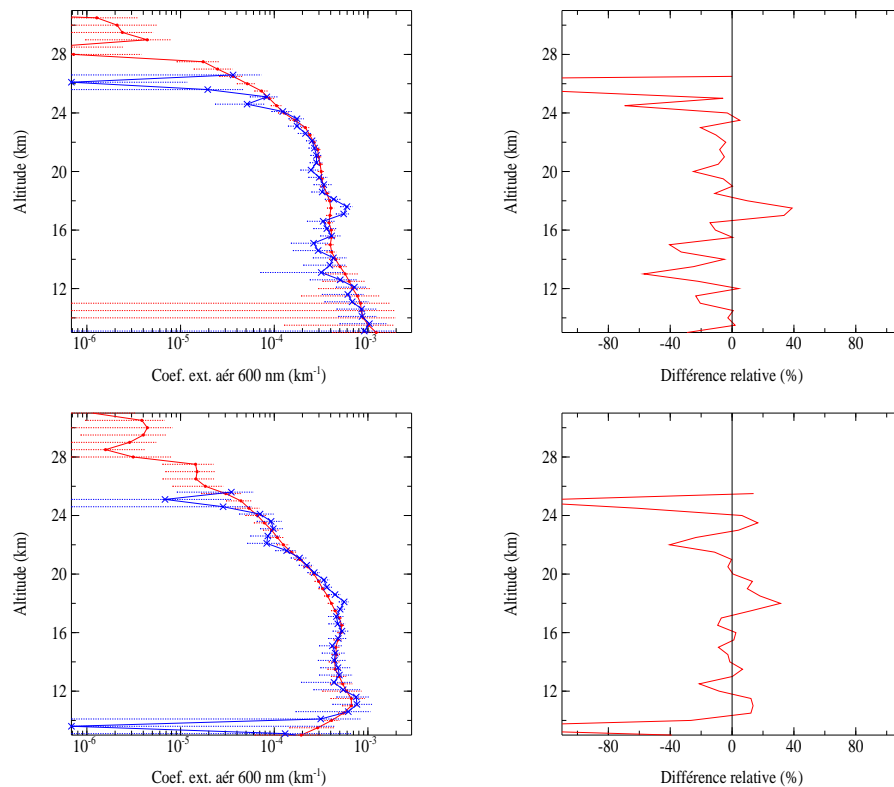


FIG. 4.20 – Identique à la figure 4.16 mais pour les profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols à 601 nm (en rouge : LOA et en bleu : LaRC).

gueur d'onde que la section efficace d'absorption de l'ozone est la plus importante (voir figure 4.7). Le dioxyde d'azote est également un absorbant dans ce canal.

La figure 4.20 présente les résultats des comparaisons.

Les profils issus de l'algorithme du LaRC sont globalement plus 'accidentés' que ceux du LOA, surtout pour l'événement au nord. De plus, ils présentent tous deux une altitude plafond inférieure à celle du LOA (26 km pour le LaRC et 40 km pour le LOA).

Au nord, les coefficients d'extinction du LaRC sont inférieurs à ceux du LOA si on excepte la gamme d'altitude située entre 17 et 18 km où l'algorithme du LaRC détecte un léger pic d'extinction non restitué par l'algorithme du LOA. Notons que ce pic d'extinction des aérosols est également visible sur les profils d'extinction LaRC aux autres longueurs d'onde (sauf à 1022 nm et 1545 nm). Le profil des différences relatives est également très accidenté : les différences oscillent entre -2 et -60% entre 10 et 24 km. Au-dessus, les différences sont plus importantes. Elles sont même inférieures à -100% à 25.5 et 26 km.

Au sud, les différences relatives oscillent autour de la valeur nulle. En-dessous de 24 km, elles sont comprises entre -40 et 30%. Au-dessus de 24 km, elles diminuent fortement (jusqu'à moins de -100%) avant d'atteindre 14% à 25.5 km.

Dans ce canal, l'accord entre les 2 coefficients d'extinction est globalement moins bon que celui constaté dans les canaux de longueurs d'onde inférieures.



### Le coefficient d'extinction aérosols à 675 nm :

L'ozone et le dioxyde d'azote absorbent également le rayonnement à 675 nm. Cependant, l'absorption du dioxyde d'azote devient faible. Son influence devient alors à cette longueur d'onde très faible. L'absorption de l'ozone quant à elle, reste importante quoique inférieure à celle à 601 nm.

Les résultats des comparaisons à 675 nm sont présentés sur les figures 4.21. Tout comme

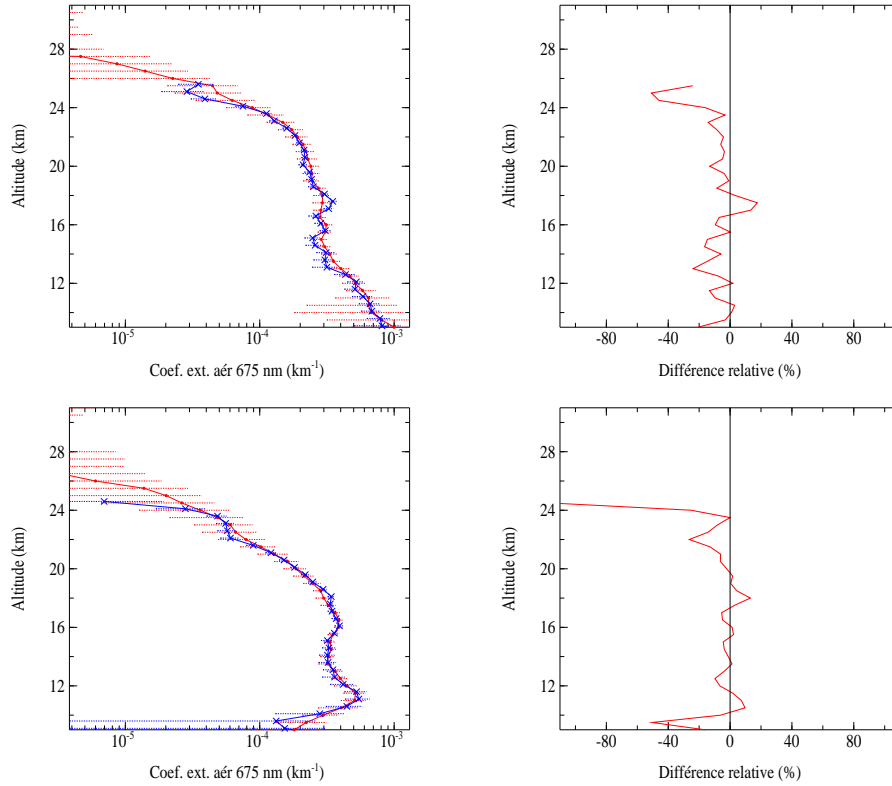


FIG. 4.21 – Identique à la figure 4.16 mais pour les profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols à 675 nm (en rouge : LOA et en bleu : LaRC).

à 601 nm, les profils issus de l'algorithme du LaRC sont plus accidentés que ceux du LOA et plus spécialement pour l'événement au nord. L'altitude plafond de restitution du coefficient d'extinction des aérosols à cette longueur d'onde est de 25.5 km pour le LaRC et de 40 km pour le LOA en ce qui concerne l'événement au nord et de 24.5 km pour le LaRC et également de 40 km pour le LOA en ce qui concerne l'événement au sud.

Au nord, les coefficients d'extinction des aérosols LaRC à 675 nm sont inférieurs à ceux du LOA sur toute la gamme d'altitude sauf aux niveaux du pic d'extinction détecté par l'algorithme du LaRC (17 - 18 km). Les différences relatives sont comprises entre -23 et -1% en-dessous de 24 km (sans considérer les différences relatives positives liées au pic d'extinction). Au-dessus de 24 km, les différences sont comprises entre -25 et -50%.

Pour l'événement au sud, les différences relatives oscillent autour de zéro. Elles sont comprises entre -25 et 25% en-dessous de 24 km. A 24.5 km, la différence relative excède -100%.

Au regard des comparaisons liées à l'événement au nord, il semblerait que les coefficients d'extinction des aérosols à 675 nm issus de l'algorithme du LOA soient supérieurs à ceux du LaRC (différences relatives autour de -10%). Pour l'événement au sud, les différences

relatives sont plus proches de la valeur nulle. Pour ces deux événements, il faut noter également que l'algorithme du LOA génère un profil plus lisse que celui déduit de l'algorithme du LaRC.

### Le coefficient d'extinction aérosols à 755 nm :

A 755 nm, le dioxyde d'azote n'absorbe plus le rayonnement. Quant à l'ozone, sa contribution, quoique de plus en plus faible continue d'être prise en compte.

Les résultats des comparaisons à cette longueur d'onde sont présentés sur les figures 4.22. Pour l'hémisphère nord, le profil issu de l'algorithme du LaRC s'étend jusqu'à 27.5 km et celui issu de l'algorithme du LOA jusque 39.5 km. Au sud, les altitudes plafonds sont de 28 km pour le LaRC et de 40.5 km pour le LOA. Pour l'hémisphère nord, les oscillations observées sur les profils des coefficients d'extinction aux longueurs d'onde inférieures issues de l'algorithme du LaRC sont encore présentes sur le profil à 755 nm mais elles sont très atténuées.

Pour l'événement au nord, le profil LaRC est très proche du profil LOA entre 10 et 24 km. Les différences relatives sont globalement négatives (à l'exception du pic d'extinction détecté par l'algorithme du LaRC). Elles sont comprises entre -8 et 0%. Au-dessus de 24 km, la comparaison est moins bonne, les différences relatives s'étendent de -44 à -20%.

Au sud, la comparaison est également très bonne. Les différences relatives sont comprises entre -13 et 5% entre 10 et 24.5 km. Au-dessus de cette altitude, les différences augmentent (en valeurs absolues) atteignant -60% à 26 km puis se rapprochent de zéro.

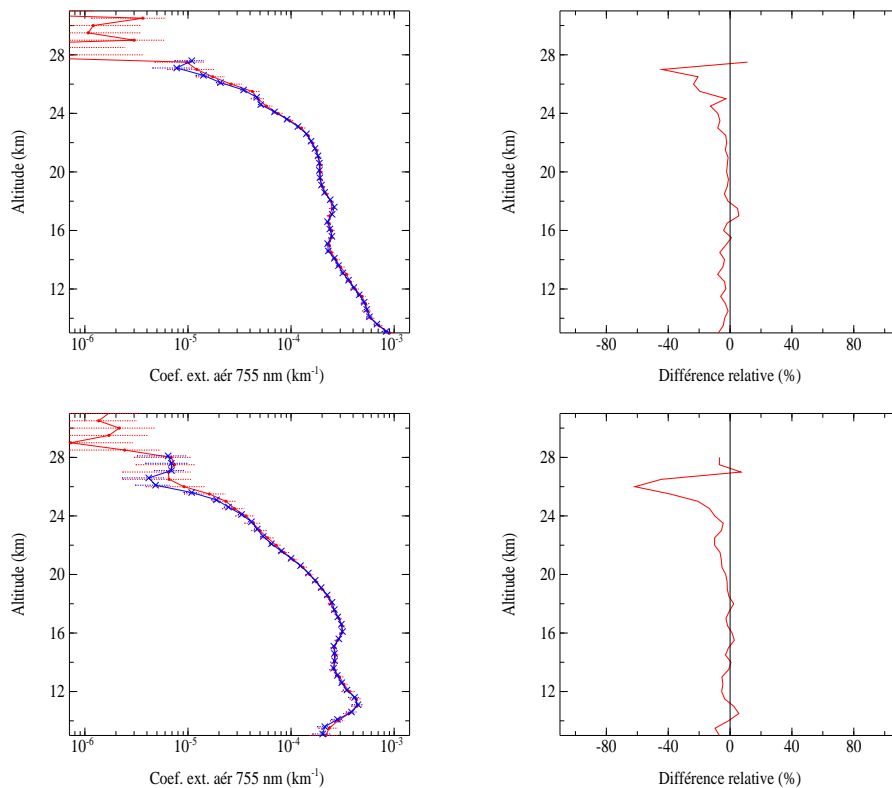


FIG. 4.22 – Identique à la figure 4.16 mais pour les profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols à 755 nm (en rouge : LOA et en bleu : LaRC).

### Le coefficient d'extinction aérosols à 869 nm :

La contribution de l'ozone, de plus en plus faible est encore prise en compte dans ce canal. Au nord et au sud, l'altitude plafond pour les profils LaRC est de 27.5 km et pour les profils LOA de 39 km. Les résultats de ces comparaisons sont présentés sur les figures 4.23.

Pour l'hémisphère nord, la comparaison entre les 2 profils est très bonne sur toute la gamme d'altitude étudiée excepté à 27.5 km (la différence relative y est de 38%). Si on ne considère pas le pic d'extinction à 17 km (moins intense à cette longueur d'onde), les différences relatives sont négatives (c'est à dire  $k_{aer}^{larc} < k_{aer}^{loa}$ ). Elles sont comprises entre -8 et 0% entre 10 et 26.5 km et sont moins bonnes au-dessus.

Au sud, la comparaison est également très bonne à l'exception des plus hautes altitudes (au-dessus de 25 km) où les différences relatives varient de -25% à 25%. Entre 10 et 25 km, les différences sont comprises entre -4 et 6%.

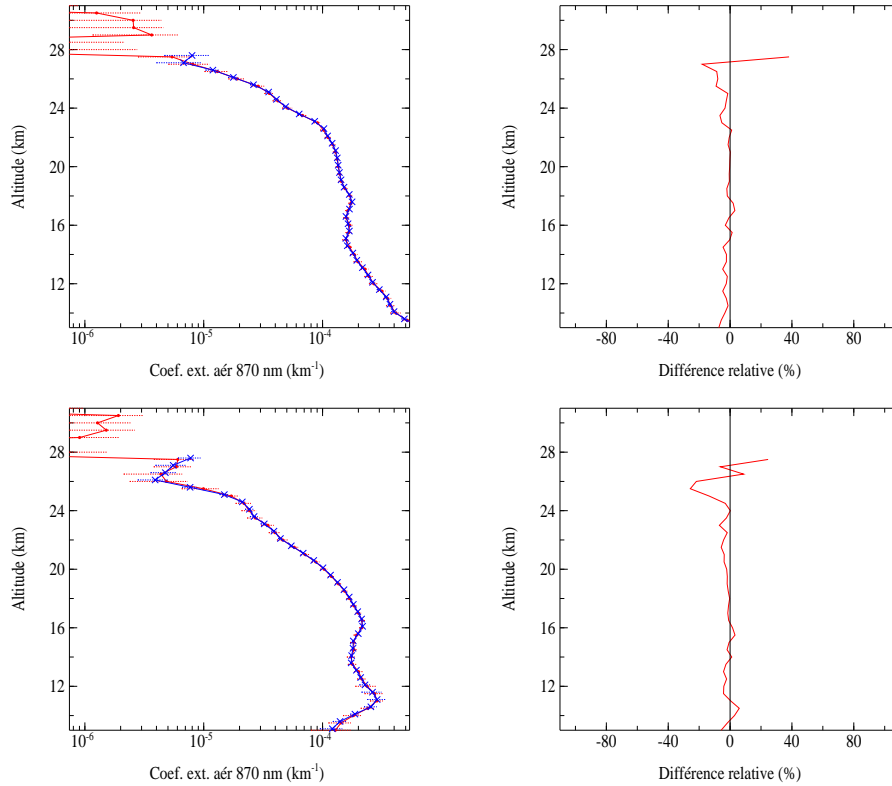


FIG. 4.23 – Identique à la figure 4.16 mais pour les profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols à 869 nm (en rouge : LOA et en bleu : LaRC).

### Le coefficient d'extinction aérosols à 1022 nm :

La très faible absorption de l'ozone est encore considérée à cette longueur d'onde. Les résultats sont présentés sur les figures 4.24.

Les altitudes plafonds pour l'événement de l'hémisphère nord sont de 35 km pour le LaRC et de 30.5 km pour le LOA. Pour l'événement au sud, elles sont de 28 km pour le LaRC et de 32.5 km pour le LOA.

Au nord, les différences relatives sont comprises entre -8 et 4% entre 10 et 26 km, les coefficients d'extinction LaRC étant le plus souvent inférieurs à ceux du LOA. Au-dessus de 26 km, les différences augmentent, devenant positives sauf à 28 km.

Pour l'événement de l'hémisphère sud, les différences relatives sont négatives à toutes les altitudes (sauf à 27 km). Elles sont comprises entre -10 et 0% en dessous de 24 km et entre -43 et -13% au-dessus. Pour cet événement, les coefficients d'extinction à cette longueur d'onde déduits de l'algorithme du LaRC sont inférieurs à ceux issus de l'algorithme du LOA.

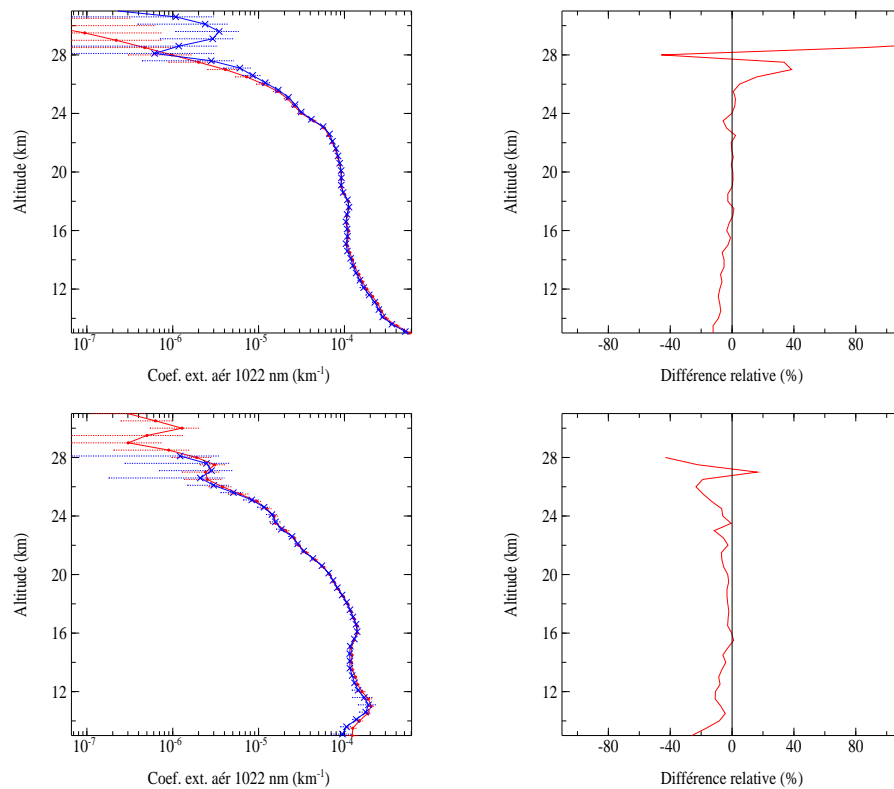


FIG. 4.24 – Identique à la figure 4.16 mais pour les profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols à 1022 nm (en rouge : LOA et en bleu : LaRC).

### Le coefficient d'extinction aérosols à 1545 nm :

Rappelons ici qu'à 1545 nm, l'extinction du rayonnement est uniquement due à la diffusion moléculaire, à l'absorption du dioxyde de carbone et à l'extinction des aérosols. La prise en compte de l'absorption du CO<sub>2</sub> dans les 2 algorithmes a déjà été discutée dans la section 4.1.1.2. Nous présentons ici les résultats des comparaisons entre les coefficients d'extinction aérosol à 1545 nm issus des 2 algorithmes (figures 4.25).

Les altitudes plafonds pour l'événement au nord sont de 45 km pour le LaRC et 40.5 km pour le LOA. Pour l'événement au sud, elles sont de 38 km pour le LaRC et 40.5 km pour le LOA.

Pour l'événement au nord, la comparaison est très bonne entre 10 et 27 km. Les différences relatives sont comprises entre -6 et 7%. Au-dessus de 27 km, les différences deviennent plus importantes.

Au sud, les différences relatives sont comprises entre -5 et 10% entre 10 et 26 km. Au-delà, les comparaisons deviennent moins bonnes.

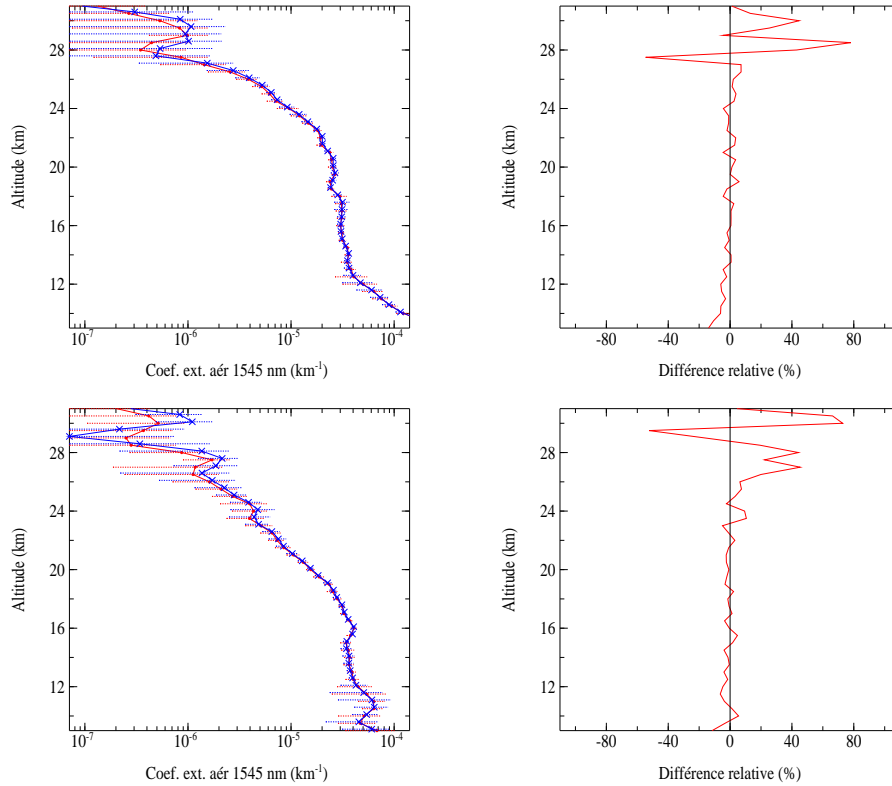


FIG. 4.25 – Identique à la figure 4.16 mais pour les profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols à 1545 nm (en rouge : LOA et en bleu : LaRC).

### 4.2.2.2 Etude statistique

Les 2 hémisphères seront considérés séparément. L'étude est menée sur un ensemble de 2000 événements par hémisphère, choisis aléatoirement. Aucune distinction saisonnière ne sera étudiée. Pour chaque produit SAGE III, nous calculerons les moyennes des différences relatives ( $\overline{\text{DIFF}}$ ), les écart-types (notés ET) sur le calcul de ces moyennes et les profils des racines carrées des moyennes des carrés des différences relatives (qu'on notera par la suite RMS pour Root Mean Square) :

$$\overline{\text{DIFF}}(z) = \sum_{i=1}^{N(z)} \frac{1}{N(z)} \text{DIFF}_i(z) \quad (4.23)$$

$$\text{ET}(z) = \sqrt{\sum_{i=1}^{N(z)} \frac{1}{N(z) - 1} (\overline{\text{DIFF}}(z) - \text{DIFF}_i(z))^2} \quad (4.24)$$

$$\text{RMS}(z) = \sqrt{\sum_{i=1}^{N(z)} \frac{1}{N(z) - 1} (\text{DIFF}_i(z))^2} \quad (4.25)$$

où  $\text{DIFF}_i(z)$  est la différence relative à l'altitude  $z$  pour la coïncidence  $i$  entre les produits issus de l'algorithme du LaRC et ceux du LOA (voir l'équation 4.22) et  $N(z)$  le nombre de coïncidences utilisées dans ces calculs à l'altitude  $z$ . Le profil de moyenne des différences relatives permettra de mettre en évidence un biais éventuel de la grandeur considérée, l'écart-type est une estimation de la dispersion des différences relatives autour de leur moyenne et le RMS des différences relatives caractérise l'accord moyen entre les 2 grandeurs.

#### L'ozone :

Les profils d'ozone LOA sont successivement comparés aux profils d'ozone LaRC mésosphériques, 'mlr' et 'aer'. La figure 4.26 présente les résultats de cette étude statistique. La colonne de gauche concerne l'hémisphère nord, celle de droite, l'hémisphère sud. En ce qui concerne les comparaisons avec l'ozone mésosphérique (figures du haut), aucune disparité inter-hémisphérique n'apparaît. En moyenne, les différences relatives sont négatives (c'est à dire que le produit LOA est en moyenne supérieur au produit mésosphérique du LaRC). Des différences relatives assez faibles, comprises entre -10 et 0% sont observées de 50 à 60 km au nord et de 52 à 67 km au sud. Sur ces gammes d'altitude, les dispersions sont comprises entre 10 et 45% au nord et entre 17 et 55% au sud et les RMS entre 17 et 45% au nord et entre 18 et 57% au sud. De telles dispersions et de telles RMS ne permettent pas, en dépit de différences relatives proches de zéro, de conclure sur un bon accord entre les 2 produits sur ces gammes d'altitudes. En deçà et au delà de ces gammes d'altitude, les différences relatives sont plus importantes atteignant -65% et -80% au nord et au sud respectivement avec des dispersions et des RMS importantes. En moyenne, les profils LOA d'ozone ne sont donc pas en accord avec les profils mésosphériques du LaRC. Il faut noter ici que l'algorithme du LOA n'utilise pas le canal UV de SAGE III. Les comparaisons entre les profils d'ozone LOA et les profils 'mlr' du LaRC montrent un très bon accord au nord entre 10 et 45 km et au sud entre 15 et 47 km (différences relatives entre -5 et 0%, dispersions et RMS entre 5 et 20%). En dehors de cette gamme d'altitude,

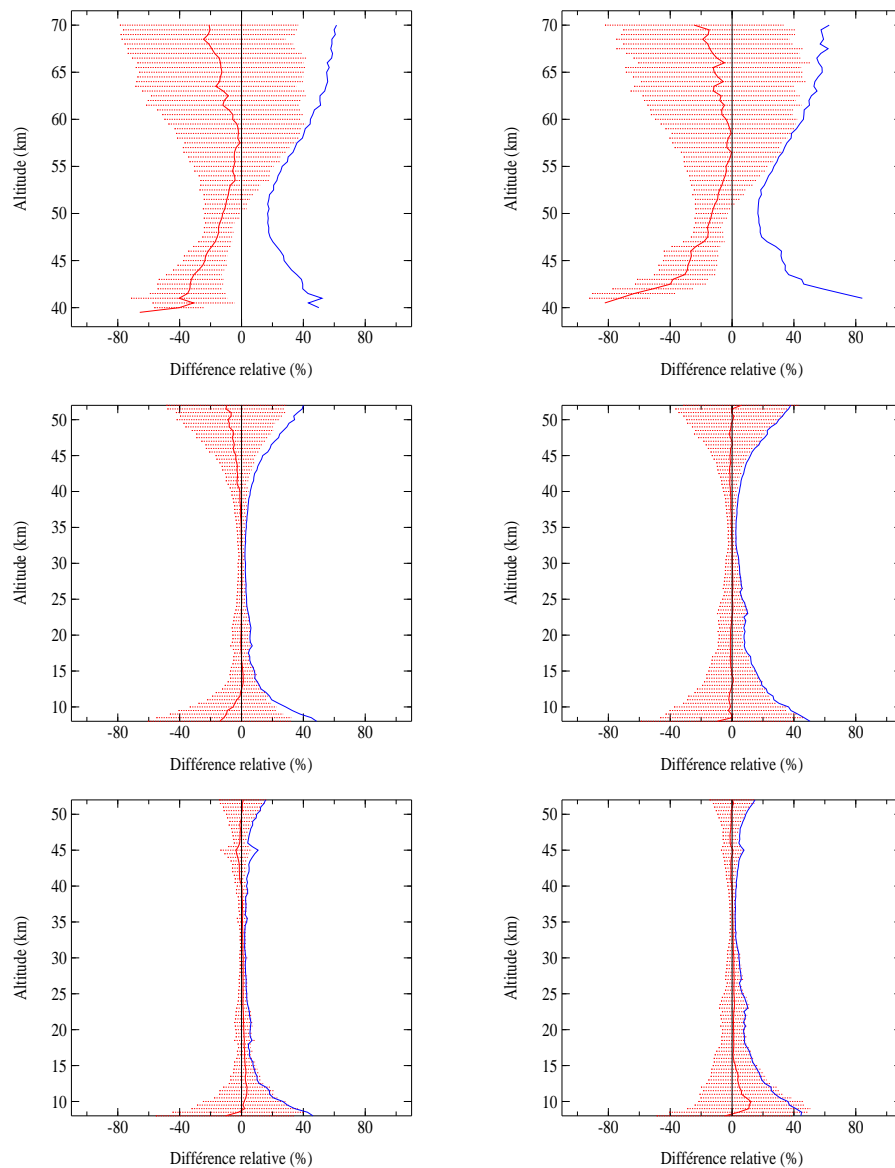


FIG. 4.26 – Profils des moyennes des différences relatives (en rouge) entre les concentrations en ozone issues des algorithmes du LOA et du LaRC (en haut :  $O_3$  mésosphérique, au milieu :  $O_3$  mlr et en bas :  $O_3$  aé). Les dispersions sont représentées par les lignes pointillées rouges et les profils des RMS des différences relatives sont en bleu. La colonne de gauche concerne l'hémisphère nord et celle de droite, l'hémisphère sud.

les dispersions et les RMS sont trop importants pour conclure sur un bon accord entre les 2 profils.

Les profils d’ozone du LOA sont également en très bon accord avec les profils d’ozone ‘aer’ du LaRC. Au nord, entre 10 et 55 km, les différences relatives sont comprises entre -3 et 3% avec des dispersions et des RMS inférieurs à 20%. Au sud, le meilleur accord moyen est trouvé entre 13 et 55 km (même valeurs de différences relatives, de dispersions et de RMS qu’au nord). Au delà de 55 km, les dispersions et les RMS deviennent très important.

### Le dioxyde d’azote :

Rappelons ici que les profils de  $\text{NO}_2$  sont obtenus à partir du canal SAGE III centré à 441.4 nm, que ce canal est affecté par un défaut de neutralité spectrale de l’atténuateur solaire et que les deux algorithmes ne gèrent pas ce problème de la même façon (voir paragraphe 4.1.1.4). De plus, les sections efficaces d’absorption du  $\text{NO}_2$  et de  $\text{O}_3$  utilisées dans l’algorithme du LOA sont fixes quelle que soit la température (voir paragraphe 4.1.2.1). La figure 4.27 présente le résultat de l’étude statistique.

Les résultats obtenus dans l’hémisphère nord sont sensiblement identiques à ceux obtenus dans l’hémisphère sud. Entre 15 et 40 km, les moyennes des différences relatives sont comprises entre -10 et 10% avec des dispersions et des RMS compris entre 14 et 40%. Les meilleurs accords sont trouvés entre 23 et 35 km au nord et entre 20 et 36 km au sud (différences relatives entre -5 et 7% et écarts-types et RMS inférieurs à 20%). De plus, entre 20 et 36 km, les RMS sont globalement inférieurs aux incertitudes sur la restitution du  $\text{NO}_2$  (de 10 à 20% à ces niveaux). L’accord entre les concentrations en dioxyde d’azote issues des algorithmes du LOA et du LaRC peut donc être considéré comme bon à ces altitudes. Au-dessus de 40 km et en-dessous de 15 km, les dispersions et les RMS deviennent trop important (supérieurs à 40%) pour pouvoir conclure sur un bon accord moyen entre les 2 profils SAGE III de dioxyde d’azote.

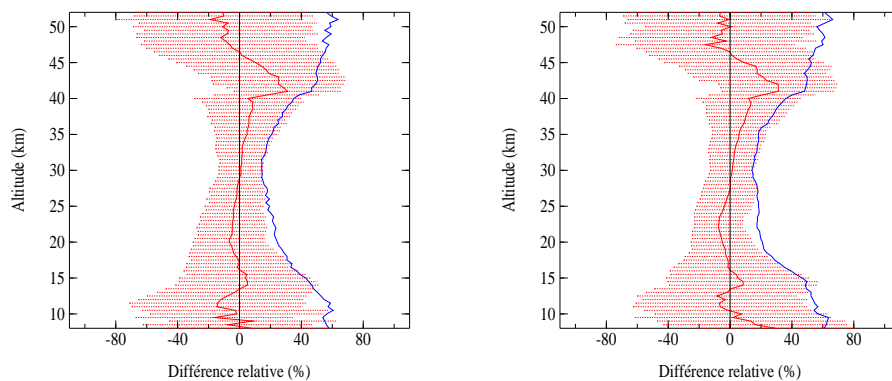


FIG. 4.27 – Profils des moyennes des différences relatives (en rouge) entre les concentrations en  $\text{NO}_2$  issues des algorithmes du LOA et du LaRC. Les dispersions sont représentées par les lignes pointillées rouges et les profils des RMS des différences relatives sont en bleu. La figure de gauche concerne l’hémisphère nord et celle de droite, l’hémisphère sud.



### Le coefficient d'extinction des aérosols à 385 nm :

Les profils verticaux sont présentés sur la figure 4.28.

Là encore, aucune différence inter-hémisphérique n'est flagrante. Au-dessus de 11.5 km, les moyennes des différences relatives sont négatives pour les deux hémisphères (c'est à dire  $k_{aer}^{larc} < k_{aer}^{loa}$ ). Globalement, un bon accord est obtenu dans les deux hémisphères entre 11.5 et 30 km (différences relatives comprises entre -20 et -2% au nord et au sud si on excepte les résultats obtenus à 10.5 et 11 km). Dans l'hémisphère nord, le meilleur accord est obtenu entre 14 et 28 km et au sud, entre 15 et 27 km (différences relatives de l'ordre de -2 à -4%, dispersions et RMS inférieurs à 20%). A ces niveaux, les RMS sont inférieurs à l'incertitude sur notre produit (20 à 30%). Ainsi, nous pouvons conclure que les coefficients d'extinction des aérosols à 385 nm issus des deux algorithmes sont en bon accord compte tenu des incertitudes sur ces deux produits.

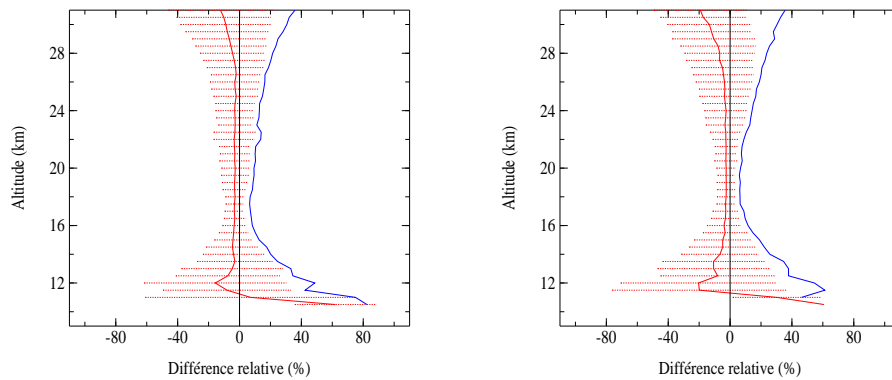


FIG. 4.28 – Identique à la figure 4.27 mais pour les profils des coefficients d'extinction des aérosols à 385 nm.

### Le coefficient d'extinction des aérosols à 448.5 nm :

Comme pour la concentration en dioxyde d'azote, la restitution du coefficient d'extinction des aérosols à 448.5 nm souffre du défaut de neutralité de l'atténuateur dans ce canal. Là aussi, les 2 algorithmes ne traitent pas ce problème de la même façon. La qualité du coefficient d'extinction des aérosols est directement liée à celle de la concentration en  $\text{NO}_2$ . Les résultats sont représentés sur la figure 4.29.

Globalement, la moyenne des différences relatives est négative ( $k_{aer}^{larc} < k_{aer}^{loa}$ ) pour les deux hémisphères. Elle est comprise entre -20 et -5% au nord et entre -22 et -3% au sud. Le meilleur accord est obtenu entre 14 et 25 km au nord et au sud (différences relatives comprises entre -15 et -5%, dispersions et RMS inférieurs à 20%). Aussi, les incertitudes sur la restitution du coefficient d'extinction à cette longueur d'onde est de l'ordre de 15 à 20% entre 14 et 25 km. Ainsi pouvons nous conclure sur un bon accord entre ces deux produits entre 14 et 25 km compte tenu des incertitudes. Dans les deux hémisphères, au-dessus de 25 km, les moyennes des différences relatives se dégradent et les dispersions augmentent.

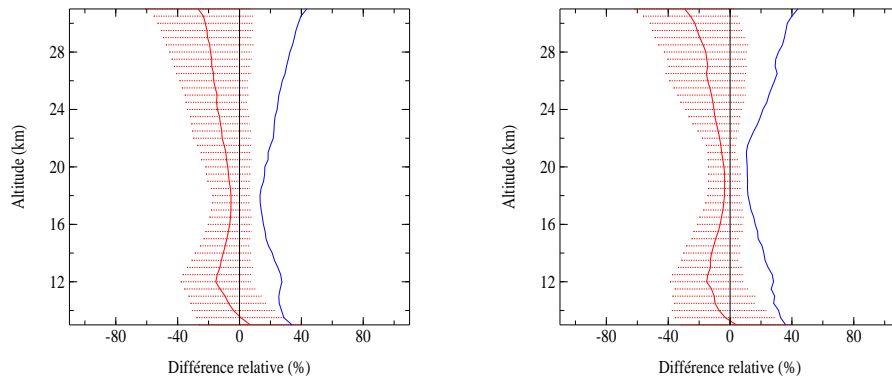


FIG. 4.29 – Identique à la figure 4.27 mais pour les profils des coefficients d'extinction des aérosols à 448.5 nm.

### Le coefficient d'extinction des aérosols à 520 nm :

Les résultats à 520 nm sont présentés sur la figure 4.30.

A partir de 10 km, les moyennes des différences relatives sont négatives dans les 2 hémisphères ( $k_{aer}^{larc} < k_{aer}^{loa}$ ).

Dans l'hémisphère nord, entre 10 et 22 km, les moyennes des différences relatives sont comprises entre -10 et -1% avec des dispersions inférieures à 20% et les RMS des différences relatives compris entre 10 et 22% (de l'ordre de l'incertitude sur notre produit à ces niveaux). Entre 22 et 30 km, les moyennes des différences relatives sont comprises entre -20 et -10% avec des écarts-types et les RMS des différences relatives augmentant avec l'altitude (de 20 à 40% et de 22 à 47% respectivement). On peut donc conclure sur un bon accord entre les profils des coefficients d'extinction à 520 nm entre 10 et 22 km dans l'hémisphère nord.

Au sud, les différences relatives sont en moyenne comprises entre -12 et 0% entre 10 et 25 km avec des dispersions et des RMS relativement faibles (inférieures à 20 et 24% respectivement). Ici, les RMS sont un peu supérieurs aux incertitudes sur notre produit (15 à 20%). Au-dessus de 25 km, les écarts-types augmentent jusqu'à -40% ne permettant pas d'affirmer un bon accord entre les 2 profils à ces altitudes en dépit de différences relatives moyennes acceptables (entre -24 et -12%).

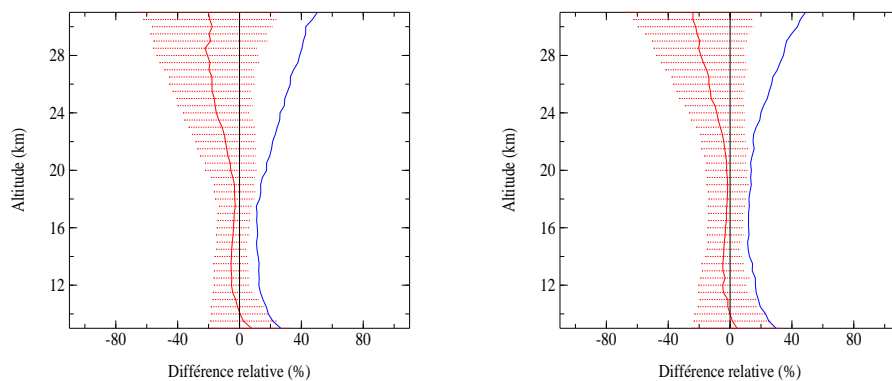


FIG. 4.30 – Identique à la figure 4.27 mais pour les profils des coefficients d'extinction des aérosols à 520 nm.

### Le coefficient d'extinction des aérosols à 601 nm :

Les résultats des comparaisons sont représentés sur la figure 4.31.

Les résultats ne présentent pas de différences inter-hémisphériques flagrantes. De bons accords sont trouvés dans l'hémisphère nord entre 10 et 21 km et dans l'hémisphère sud entre 13 et 21 km (les moyennes des différences relatives sont entre -10 et 1%, les dispersions inférieures à 20% et les RMS des différences relatives entre 19 et 27%). Toutefois, les incertitudes sur notre produit à ces altitudes sont plus faibles (de l'ordre de 10%). En dehors de ces gammes d'altitude, les dispersions et les RMS augmentent empêchant de conclure sur un bon accord en moyenne à ces altitudes.

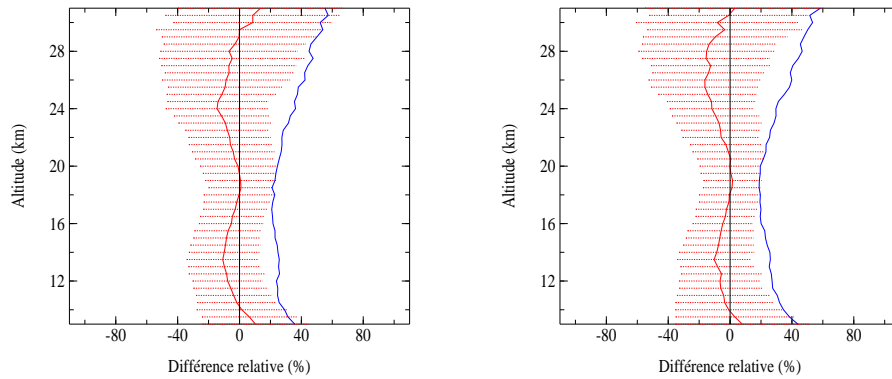


FIG. 4.31 – Identique à la figure 4.27 mais pour les profils des coefficients d'extinction des aérosols à 601 nm.

### Le coefficient d'extinction des aérosols à 675 nm :

Les résultats sont présentés sur la figure 4.32.

Dans l'hémisphère nord, un bon accord (compte tenu des incertitudes de l'ordre de 20% sur notre produit) est obtenu entre 10 et 22 km : les moyennes des différences relatives sont comprises entre -6 et 0%, les dispersions sont inférieurs à 20% et les RMS entre 13 et 20%. Au sud, un tel accord n'est obtenu qu'entre 15 et 20 km. En dehors de ces gammes d'altitude, les écarts-types sont considérés trop important pour pouvoir conclure.

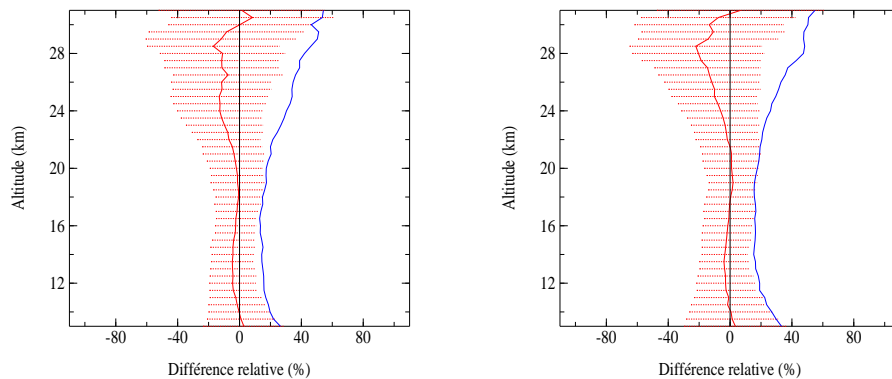


FIG. 4.32 – Identique à la figure 4.27 mais pour les profils des coefficients d'extinction des aérosols à 675 nm.

### Le coefficient d'extinction des aérosols à 755 nm :

La figure 4.33 présente les résultats de l'étude statistique à 755 nm.

Notons qu'à cette longueur d'onde, l'incertitude sur notre produit est comprise entre 8 et 12% entre 10 et 24 km. Au nord comme au sud, les différences relatives sont en moyenne légèrement négatives ( $k_{aer}^{larc} < k_{aer}^{loa}$ ).

Dans l'hémisphère nord, l'accord est très bon (compte tenu des incertitudes) entre 10 et 26 km : les moyennes des différences relatives sont entre -12 et -1%, les écarts-types sont inférieurs à 20% et les RMS sont compris entre 5 et 23%.

Au sud, entre 10 et 27 km, l'accord entre les deux produits est très bon (compte tenu des incertitudes) : différences relatives entre -10 et -1%, écarts-types inférieurs à 20% et RMS entre 6 et 23%. Dans les deux hémisphères, au-delà de 23 km, les moyennes des différences relatives ne descendent pas sous -20% mais les dispersions et les RMS sont trop importants pour garantir un bon accord entre les deux produits à ces altitudes

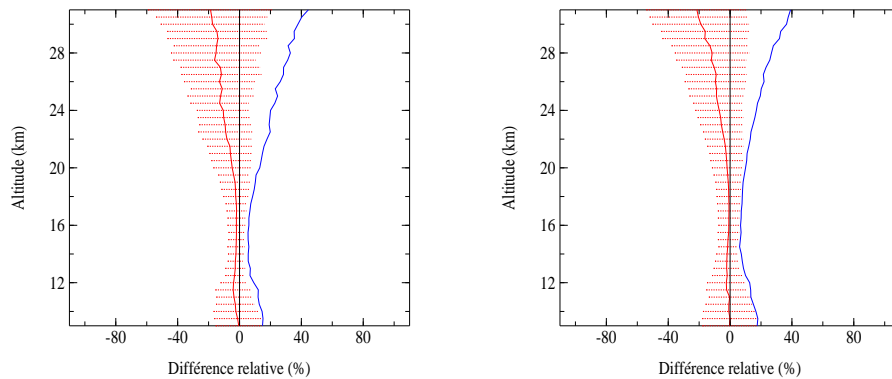


FIG. 4.33 – Identique à la figure 4.27 mais pour les profils des coefficients d'extinction des aérosols à 755 nm.

### Le coefficient d'extinction des aérosols à 869 nm :

Les résultats à cette longueur d'onde sont présentés sur la figure 4.34.

En moyenne, les différences relatives sont faiblement négatives sur toute la gamme d'altitude étudiée et dans les deux hémisphères.

Aucune différence inter-hémisphérique n'apparaît de façon flagrante à cette longueur d'onde. Au nord, comme au sud, l'accord entre les deux profils du coefficient d'extinction des aérosols à 869 nm est très bon entre 10 et 27 km (compte tenu des incertitudes de l'ordre de 10%) : les différences relatives sont en moyenne comprises entre -6 et 0% avec des écarts-types et des RMS inférieurs à 20%. Au-dessus de 27 km, les différences relatives ne descendent pas sous -10%, mais les dispersions sont plus importantes (entre 20 et 30%). L'accord entre les deux produits au nord comme au sud peut ainsi être tout de même considéré comme correct.

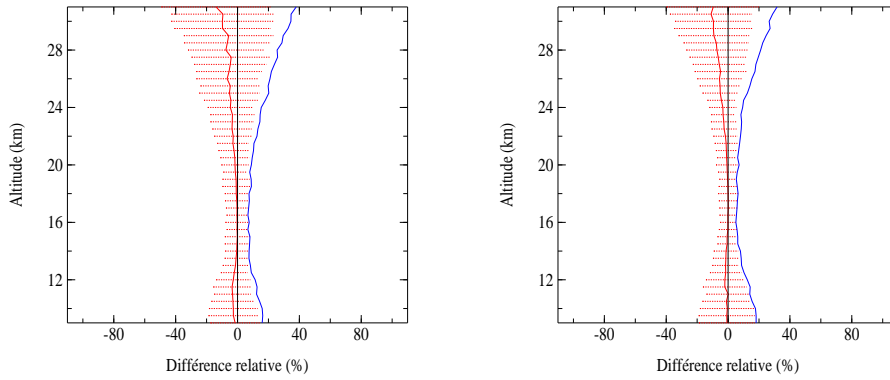


FIG. 4.34 – Identique à la figure 4.27 mais pour les profils des coefficients d'extinction des aérosols à 869 nm.

#### Le coefficient d'extinction des aérosols à 1022 nm :

Les résultats des comparaisons à 1022 nm sont présentés sur la figure 4.35.

Aucune différence inter-hémisphérique n'est mise en évidence à cette longueur d'onde. Par conséquent, la discussion suivante s'applique aux deux hémisphères. Compte tenu des incertitudes (de l'ordre de 10%), un très bon accord moyen entre les deux profils est obtenu sur la quasi-totalité de la gamme d'altitude étudiée. Les moyennes des différences relatives sont comprises entre -10 et 5%. Les écarts-types et les RMS des différences relatives sont inférieurs à 20% en-dessous de 27 km. Au-dessus de 27 km, les écarts-types et les RMS augmentent seulement jusque 32% à 30 km. L'accord entre les profils des coefficients d'extinction est donc très bon sur toute la gamme d'altitude.

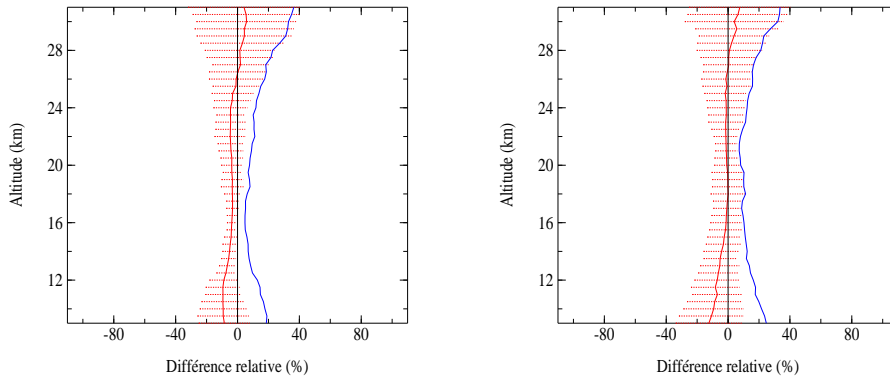


FIG. 4.35 – Identique à la figure 4.27 mais pour les profils des coefficients d'extinction des aérosols à 1022 nm.

#### Le coefficient d'extinction des aérosols à 1545 nm :

A 1545 nm, la contribution de l'absorption du dioxyde de carbone est à prendre en compte (voir paragraphe 4.1.1.2). Les résultats sont présentés sur la figure 4.36.

Pour ce produit, nos incertitudes sont de l'ordre de 10% en-dessous de 24 km. Là aussi, les résultats dans les deux hémisphères ne présentent pas de disparités flagrantes. Entre 10 et 24 km dans l'hémisphère nord, les différences relatives sont en moyenne comprises entre -5 et 7% avec des écarts-types entre 4 et 20%. Sur cette gamme d'altitude, les RMS

sont inférieurs à 22%. Pour l'hémisphère sud, ces mêmes résultats sont également obtenus mais jusque 26 km. Les différences observées entre les profils du coefficient d'extinction des aérosols à cette longueur peuvent être attribuées aux différences issues du calcul de l'absorption du CO<sub>2</sub> dans les deux algorithmes [Tetard et al., 2008]. Au-dessus de 24 km au nord et 26 km au sud, les différences relatives augmentent atteignant 25% (au nord) et 23% (au sud) à 30 km. Les écarts-types et les RMS augmentent aussi. Ces différences à haute altitude peuvent être en partie imputées à la faible charge en aérosol à ces altitudes rendant la restitution difficile.

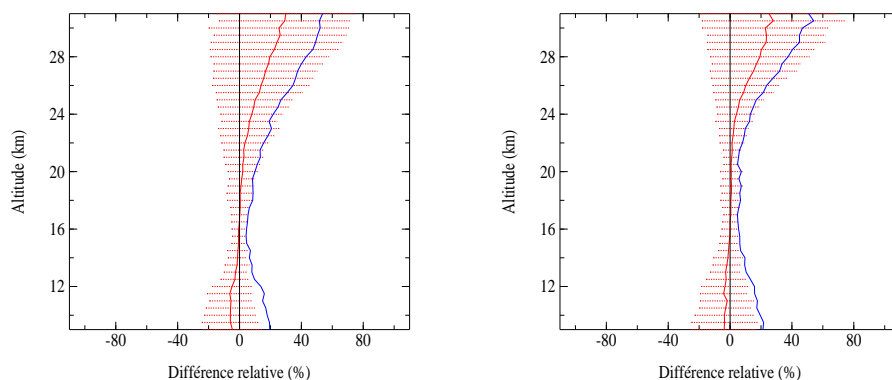


FIG. 4.36 – Identique à la figure 4.27 mais pour les profils des coefficients d'extinction des aérosols à 1545 nm.

### 4.2.3 Conclusions

Globalement, les produits issus de l'algorithme d'inversion du LOA sont en bon accord avec ceux de l'algorithme du LaRC. Aucun biais n'a été trouvé, si ce n'est pour le profil d'ozone dans la mésosphère. En effet, les différences trouvées dans la mésosphère sont principalement liées au fait que l'algorithme du LOA n'utilise pas le canal UV de SAGE III contrairement à l'algorithme officiel. La prise en compte de ce canal s'avère donc nécessaire et sera donc effectuée de manière à obtenir un profil d'ozone mésosphérique de bonne qualité.

Aucune différence inter-hémisphérique flagrante n'a été mise en évidence.

Cette étude a permis d'intervalider les produits SAGE III issus de deux algorithmes différents. Nous confrontons maintenant les produits SAGE III du LOA à ceux issus d'un troisième algorithme.

## 4.3 Validation avec les produits de l'algorithme du SPbSU

### 4.3.1 Description de l'algorithme du SPbSU

L'algorithme d'inversion développé par l'équipe de l'université de Saint-Petersbourg [Polyakov et al., 2005] présente la particularité d'utiliser une paramétrisation pour représenter l'extinction des aérosols. Cette paramétrisation est basée sur des résultats de

modélisations numériques utilisant une base de données d'aérosols de tailles et compositions différentes incluant aérosols volcaniques et aérosols sulfatés [Timofeyev et al., 2003]. Quatre paramètres par altitude sont ainsi nécessaires pour déterminer le coefficient d'extinction des aérosols à chaque longueur d'onde. Une méthode d'estimation optimale [Rodgers, 2000] est ensuite adoptée pour déterminer ces quatre paramètres ainsi que les concentrations en ozone et en dioxyde d'azote. Un inconvénient de la méthode d'estimation optimale dans ce cas est que la résolution verticale est dégradée. En effet, la largeur à mi-hauteur des averaging kernel représentant la résolution verticale a une valeur de 1.5 km. La grille d'altitude utilisée pour l'ozone s'étend de 10.25 à 99.75 km, celle pour le dioxyde d'azote de 10.25 à 49.75 km et pour les aérosols de 10.25 à 44.75 km.

### 4.3.2 Comparaisons

L'étude de validation avec les produits de l'algorithme du SPbSU est effectuée en deux étapes : la première consiste en la comparaison d'événements individuels (un au sud et un au nord) choisis aléatoirement et la deuxième étape consiste en une étude statistique. Les coefficients d'extinction des aérosols ne seront pas comparés ici étant donné que les profils aérosols du SPbSU sont issus de paramétrisations. Seuls les profils de concentration en ozone et en dioxyde d'azote seront comparés. Leurs validations ont été effectuées par Polyakov et al. [2005] par comparaisons avec les profils SAGE III opérationnels, avec des profils de sonde-ozone, de mesures lidar et de mesures satellites (HALOE). En résumé, l'accord moyen entre les profils d'ozone du SPbSU et les profils des ballons sondes est de l'ordre de 10 à 20 % (RMS des différences relatives) dans la moyenne et haute stratosphère. Dans la basse stratosphère et la haute troposphère, l'accord est moins bon, il est parfois supérieur à 40%. Les comparaisons des profils ozone avec les mesures lidar montrent également un bon accord au-delà de 17 km (5 à 20%) et un désaccord en-dessous de 17 km. Les comparaisons ozone avec les profils HALOE présentent une différence de l'ordre de 10%. En ce qui concerne le dioxyde d'azote, des différences systématiques de l'ordre de 20 à 40% (en moyenne et en RMS des différences relatives) sont observées entre les profils de l'algorithme du SPbSU et les profils SAGE III officiels, ces derniers étant supérieurs. Les grilles d'altitude utilisées par les 2 algorithmes étant différentes, nous avons interpolé la grille du SPbSU sur celle du LOA. A l'heure de l'écriture de cette thèse, les scientifiques de l'université de Saint-Petersbourg n'ont appliqué leur algorithme qu'au 5 premiers mois de mesures de SAGE III (pour la version 4 des transmissions). Pour chaque événement, les différences relatives sont calculées sur le modèle de l'équation 4.22 en remplaçant la grandeur 'LaRC' par la grandeur 'SPbSU'.

#### 4.3.2.1 Profils individuels

Pour l'hémisphère nord, l'événement étudié a eu lieu le 12 mars 2002 à 5h (TU). Il est localisé à la latitude de 71° nord et 173° ouest (dans la mer des Tchouktches, nord du détroit de Béring). La tropopause thermique est située à 9.8 km et la température y est de 9.8 K. L'événement choisi pour l'hémisphère sud est situé au sud-est de la Nouvelle-Zélande (56.9° sud et 179° ouest). Il a eu lieu le 2 juin 2002 à 3h20 (TU). L'altitude de la tropopause est de 8.7 km et la température y est de 217 K. La figure 4.37 montre les profils de température NCEP liés à ces événements.

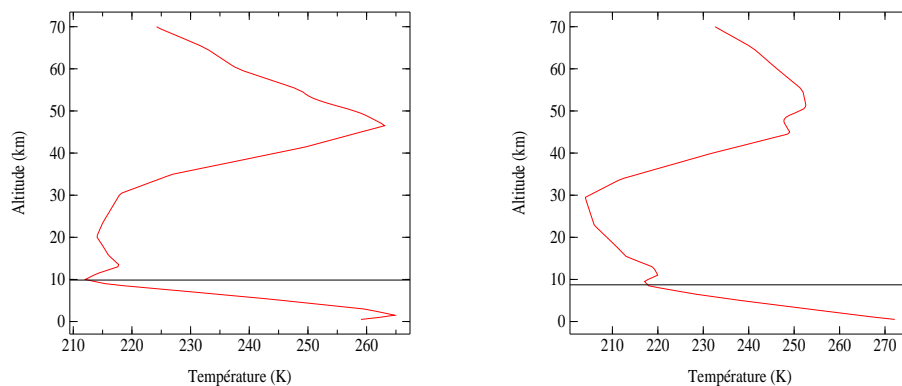


FIG. 4.37 – Profils de température associés aux événements 125220 (à gauche) et 237210 (à droite). Les lignes noires correspondent à l'altitude de la tropopause : 9.8 km pour 125220 et 8.7 km pour 237210

### L'ozone :

Les figures 4.38 présentent les résultats des comparaisons pour ces deux événements entre les profils verticaux de concentration en ozone issus des algorithmes du LOA (en rouge) et du SPbSU (en bleu). A titre indicatif, les profils verticaux de concentration en ozone issus de l'algorithme du LaRC sont également représentés dans la partie mésosphérique (profil issu des canaux ultraviolets de SAGE III). Les profils verticaux sont ici représentés jusque 70 km. Les différences relatives associées y sont également représentées.

Pour les deux événements, les accords entre les deux profils sont très bons entre 11 et 50 km. Les différences relatives pour l'événement nord n'y excèdent qu'en de rares niveaux les 1%. Au sud, elles sont le plus souvent comprises entre 0 et 2%. Au-delà de 50 km, les profils d'ozone du LOA présentent des oscillations que l'on ne retrouve ni sur les profils du SPbSU ni sur les profils mésosphériques du LaRC. A ces hautes altitudes, ces deux derniers profils sont en bon accord dans les deux hémisphères.

Aucune différence inter-hémisphérique n'apparaît au vu de ces deux comparaisons individuelles. Les profils ozone issus des algorithmes du SPbSU et de LOA sont en très bon accord dans la stratosphère (en-dessous de 50 km). Comme nous l'avons dans le chapitre 4.2, l'algorithme du LOA fournit un profil vertical d'ozone mésosphérique peu fiable.

### Le dioxyde d'azote :

Il est important de noter ici qu'aucune correction n'est effectuée dans l'algorithme du SPbSU pour pallier le défaut de neutralité spectrale de l'atténuateur. Il en résulte des profils verticaux généralement plus oscillants. Les figures 4.39 montrent les résultats des comparaisons pour les 2 événements. Les profils LaRC ont également été représentés sur ces figures. Pour les deux événements, les profils du SPbSU sont, en effet, plus oscillants que ceux du LOA et du LaRC. Au nord, les différences relatives sont les plus proches de zéro entre 26 et 36 km. Elles sont comprises entre -20 et 10% sur cette gamme d'altitude. En dessous de 26 km, les différences relatives oscillent entre -120 et +120%. Au-dessus de 36 km, les différences relatives augmentent (la concentration en ozone issue de l'algorithme du SPbSU devient supérieure à celle issue de l'algorithme du LOA) atteignant plus de 100% vers 45 km. Entre 15 et 36 km, les profils LOA et LaRC sont semblables, celui du SPbSU étant plus différent de ces deux derniers. Entre 36 et 40 km, la concentration d'ozone du LOA devient sensiblement inférieure à celles du LaRC et du SPbSU qui sont



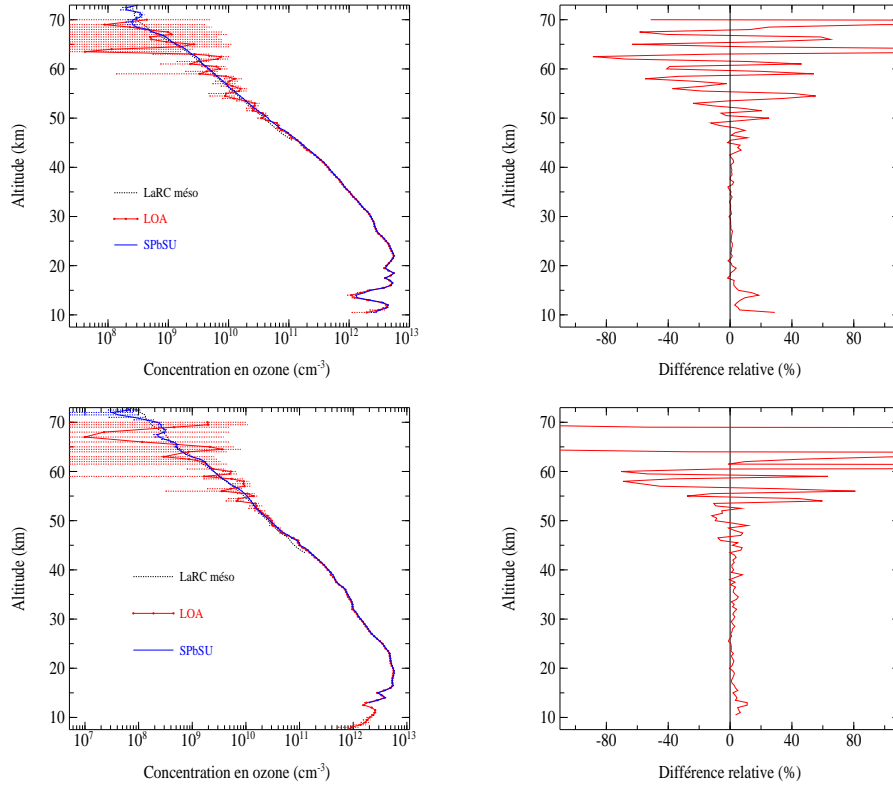


FIG. 4.38 – Profils verticaux de concentrations en ozone (à gauche) associés aux événements 125220 (en haut) et 237210 (en bas). En rouge, le profil issu de l'algorithme du LOA, en bleu, le profil SPbSU et en noir, le profil LaRC 'méso'. Les incertitudes sont représentées pour les profils LOA et SPbSU. Les profils verticaux des différences relatives associées sont représentés dans les panneaux de droite.

ici assez proches. Au-dessus de 40 km, les 3 profils diffèrent. Il importe ici de constater que, d'après le profil de température (voir figure 4.37), les sections efficaces d'absorption utilisées sont adaptées aux températures jusque près de 35 km ( $212 < T < 230$  K)

Au sud, les meilleurs accords entre les profils LOA et SPbSU sont également obtenus entre 26 et 36 km. Les différences relatives y sont comprises entre -20 et 12%. En-dessous de 26 km, les différences relatives oscillent entre -80 et plus de 100%. Notons qu'entre 20 et 32 km, les températures sont inférieures à 210 K (voir figure 4.37). Par conséquent, il faudrait utiliser les sections efficaces à basse température. Cela augmente les différences relatives d'approximativement 10 points, améliorant celles inférieures à 4% (soit quelques niveaux dans cette gamme d'altitude). Au-dessus de 36 km, elles augmentent globalement (sauf en 3 niveaux où elles sont négatives), atteignant également plus de 100%. Sur toute la gamme d'altitude étudiée, le profil SPbSU diffère des profils LOA et LaRC qui eux, sont globalement semblables.

Les profils de concentration en dioxyde d'azote étudiés ici sont globalement en désaccord. Le fait que l'algorithme du SPbSU n'effectue pas la correction faite par l'algorithme du LOA et par celui du LaRC (concernant la neutralité spectrale de l'atténuateur) semble être la raison de ces désaccords.

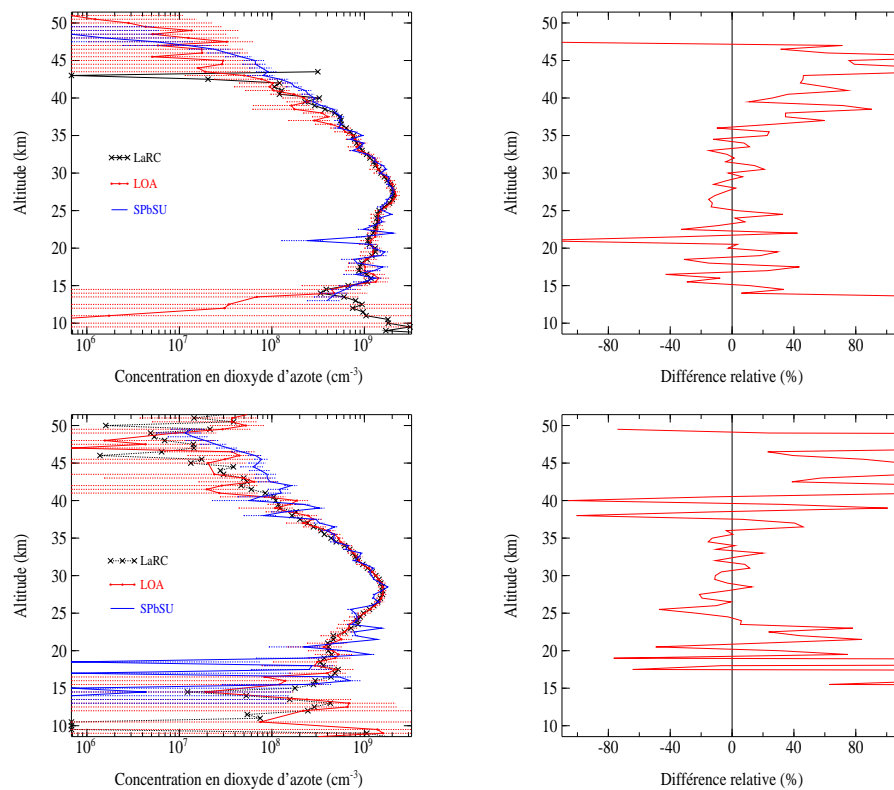


FIG. 4.39 – Identique à la figure 4.38 mais pour les profils verticaux de concentration en NO<sub>2</sub> (en rouge : LOA, en bleu : SPbSU et en noir LaRC).

#### 4.3.2.2 Etude statistique

L'étude statistique est effectuée sur l'intégralité des événements traités par l'équipe Russe à l'heure de l'écriture de cette thèse. Soit 1176 événements dans l'hémisphère nord et 1082 au sud. Les 2 hémisphères seront traités séparément afin de détecter d'éventuelles disparités inter-hémisphériques dans les comparaisons. Comme pour l'étude statistique effectuée entre les produits SAGE III du LOA et du LaRC, nous calculerons à chaque altitude la moyenne des différences relatives, l'écart-type sur le calcul de cette moyenne et le RMS des différences relatives (voir les équations 4.23 à 4.25).

##### L'ozone :

Les profils verticaux des moyennes des différences relatives sont représentés sur les figures 4.40. Les écarts-types y sont représentés par les barres de dispersion autour de chaque profil moyen.

Au nord, les moyennes des différences relatives sont comprises entre 0 et 7% en-dessous de 55 km (SPbSU > LOA). Entre 14 et 45 km, les dispersions sont très faibles (inférieures à 10%). En-dessous de 14 km, elles sont plus importantes, atteignant 60% à 10.5 km. Ainsi, dans l'hémisphère nord, entre 14 et 55 km, les profils de concentration en ozone issus des deux algorithmes sont en très bon accord. Cette conclusion est confirmée par le profil des RMS des différences relatives. Sur cette gamme d'altitude, les RMS sont compris entre 1 et 25% et sont globalement inférieures aux incertitudes sur le produit LOA (inférieures à 10%). Entre 22 et 45 km, les RMS sont même inférieurs à 5%. Au-dessus de 55 km, les

moyennes des différences relatives sont positives jusque 65 km (c'est à dire SPbSU > LOA) puis deviennent négatives atteignant -37% à 70 km. Dans la mésosphère, les dispersions sont de plus en plus importantes atteignant plus de 100% au-delà de 67 km. Au-dessus de 55 km, les RMS augmentent également très fortement de 30 à 120%. Cela confirme le manque de fiabilité du produit ozone mésosphérique du LOA. Au sud, les moyennes des différences relatives sont positives (SPbSU > LOA) en-dessous de 62 km. Sur cette gamme d'altitude, elles sont comprises entre 0 et 20%. Entre 12 et 62 km, elles sont inférieures à 10%. Cependant, les dispersions et RMS ne sont faibles (inférieures à 10%) qu'entre 23 et 50 km. Sur cette gamme d'altitude, on peut conclure qu'un bon accord entre les deux inversions existe compte tenu des incertitudes sur le produit LOA. Au-dessus de 50 km, les dispersions et les RMS augmentent fortement (atteignant respectivement 110 et 140% à 70 km) ne permettant pas de conclure sur un bon accord entre les deux algorithmes à ces altitudes. Là aussi, les profils mésosphériques d'ozone du LOA sont à mettre en question. En-dessous de 23 km, les dispersions et RMS augmentent également mais ils n'atteignent tout deux que 80%.

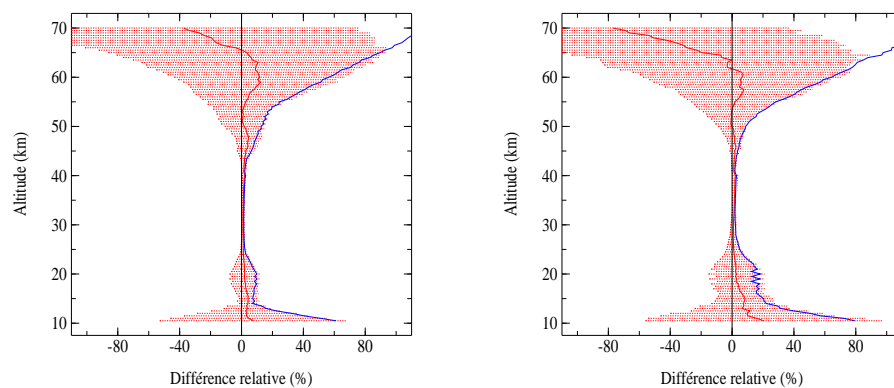


FIG. 4.40 – Profils verticaux des moyennes (en rouge) et des RMS (en bleu) des différences relatives entre les concentrations en ozone issues des algorithmes du LOA et du SPbSU pour l'hémisphère nord (à gauche) et pour l'hémisphère sud (à droite). Les lignes horizontales représentent la dispersion des différences relatives autour de leur moyenne. Les moyennes sont calculées sur les 1176 événements au nord et les 1082 événements au sud traités par l'équipe du SPbSU.

Aucune différence inter-hémisphériques ne ressort de cette étude. En moyenne, les profils d'ozone issus des 2 algorithmes sont en très bon accord dans la stratosphère pour les 2 hémisphères. Dans la mésosphère, les profils sont en désaccord. Les comparaisons individuelles du paragraphe précédent et les résultats des études de validation du profil d'ozone SPbSU Polyakov et al. [2005] ont montré que l'algorithme du SPbSU fournit des profils d'ozone mésosphérique en bon accord avec ceux issus de l'algorithme officiel, ceux déduits de mesures de ballon sonde et de lidar et ceux issus des mesures satellitaires de HALOE. Cela confirme que l'algorithme du LOA ne fournit pas de profils d'ozone mésosphérique fiables.

### Le dioxyde d'azote :

Les profils verticaux des moyennes des différences relatives (et les écarts-types) entre les concentrations en dioxyde d'azote issues des algorithmes du LOA et du SPbSU sont

présentés sur les figures 4.41.

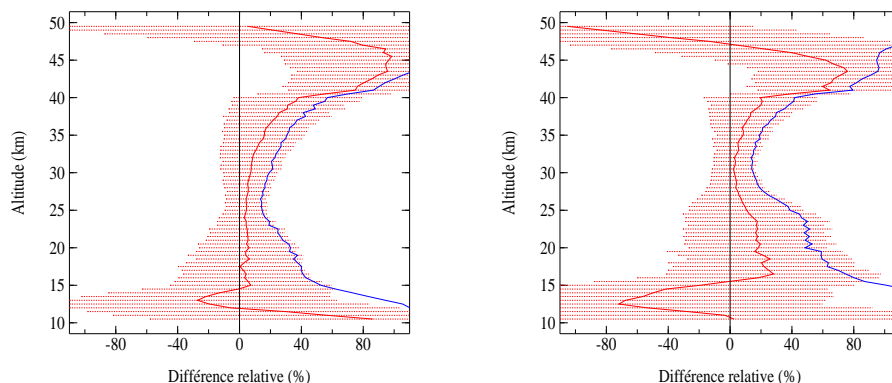


FIG. 4.41 – Identique à la figure 4.40 mais pour le dioxyde d'azote.

Globalement, l'accord moyen entre les profils de dioxyde d'azote est moins bon que celui entre les profils d'ozone.

Pour l'hémisphère nord, au-dessus de 15 km, les moyennes des différences relatives sont positives (c'est à dire  $\text{SPbSU} > \text{LOA}$ ). De 15 à 35 km, elles sont comprises entre 0 et 16%, les écarts-types et les RMS étant relativement faibles (de 12 à 40% et de 13 à 50% respectivement). Ces relativement faibles dispersions et RMS couplés à des différences relatives moyennes faibles permettent de conclure sur un accord correct entre les produits  $\text{NO}_2$  entre 15 et 35 km dans l'hémisphère nord. Au-dessus de 35 km, les différences augmentent jusque 46 km passant de 16% à 98%. Au-dessus de 46 km, elles diminuent, atteignant 5% à 49.5 km. L'écart type est en constante augmentation au-dessus de 35 km. Il est alors difficile de conclure sur un bon accord entre les 2 produits  $\text{NO}_2$  au-dessus de 35 km dans l'hémisphère nord. En-dessous de 15 km, l'importance des dispersions et des RMS (tout deux supérieurs à 60%) ne permet pas de conclure sur un bon accord entre les 2 produits à ces niveaux.

Au sud, les différences relatives sont positives à partir de 16 km jusque 47 km. Elles sont comprises entre 2 et 76%. En moyenne, les meilleurs accords sont obtenus entre 25 et 39 km (de 2 à 16%) avec des écarts-types relativement faibles (de 13 à 37%) et des RMS entre 13 et 35%. En-dessous de 16 km, les différences relatives sont négatives (comprises entre -1 et -70%) avec des écarts-types importants (de 100 à 160%). Au-dessus de 47 km, les différences relatives sont négatives (en moyenne), comprises entre -13 et -100%, les écarts-types étant supérieurs à 100%.

Les profils moyens des différences relatives concernant le dioxyde d'azote présentent de légères disparités inter-hémisphériques. Dans la basse stratosphère (de 15 à 25 km), les moyennes des différences relatives dans l'hémisphère nord sont plus proches de la valeur zéro que dans l'hémisphère sud. Les écarts-types, relativement importants dans les 2 profils (nord et sud) sur toute la gamme d'altitude étudiée, montrent que les différences relatives individuelles sont très dispersées. Cette forte dispersion des différences relatives est le reflet du fait que l'algorithme de l'université de Saint Petersburg ne prend pas en compte la non-neutralité spectrale de l'atténuateur solaire dans les canaux situés autour de 450 nm (zone spectrale où l'absorption du dioxyde d'azote est maximale).

### 4.3.3 Conclusions

En conclusion de cette étude de validation, les profils de concentration en ozone issus des algorithmes d'inversion développés au LOA et au SPbSU sont, en moyenne, en très bon accord dans la stratosphère. Au-delà de 50 km, les profils du LOA ne sont pas fiables. En ce qui concerne le dioxyde d'azote, l'étude statistique révèle un accord moyen relativement correct (entre 2 et 16%) entre 15 et 35 km dans l'hémisphère nord et entre 25 et 37 km dans l'hémisphère sud.

## 4.4 Validation avec les produits de POAM III

### 4.4.1 Description de l'algorithme de POAM III

L'algorithme d'inversion mis en place par l'équipe du NRL pour inverser les profils verticaux des épaisseurs optiques le long des lignes de visée dans les 9 canaux de POAM III débute par l'inversion spectrale. La spécificité de cette inversion spectrale réside dans le fait que la contribution des aérosols n'est pas déterminée canal par canal. A chaque altitude tangente, l'épaisseur optique d'extinction des aérosols le long des lignes de visée à la longueur d'onde  $\lambda_i$  est contrainte par la paramétrisation suivante :

$$\delta_{aer}(\lambda_i) = \mu_0 + \mu_1 \kappa_i + \mu_2 \kappa_i^2 \quad (4.26)$$

où  $\kappa_i = \ln \lambda_i$  et les 3 paramètres  $\mu_0$ ,  $\mu_1$  et  $\mu_2$  seront à déterminer. Cette paramétrisation fournit une représentation adéquate des dépendances spectrales calculées à partir de modèles d'aérosols [Lumpe et al., 2002]. A chaque altitude, une méthode d'estimation optimale est mise en œuvre pour résoudre ce système de 9 équations (9 canaux) à 7 inconnues (concentrations en ozone, dioxyde d'azote, vapeur d'eau et oxygène et les 3 paramètres de l'équation 4.26). La résolution verticale, définie comme la largeur à mi-hauteur des averaging kernel, est de 1 à 1.5 km jusqu'à 25 km pour tous les canaux aérosols. Finalement, les profils verticaux sont obtenus à l'aide d'un code d'inversion spatiale standard (méthode d'estimation optimale [Rodgers, 2000]). La grille d'altitude du produit final s'étend du sol jusqu'à 60 km avec un pas de 1 km.

Les produits aérosols, dioxyde d'azote et ozone de POAM III ont été validés par Randall et al. [2001, 2002, 2003].

### 4.4.2 Comparaisons

Les produits POAM III utilisés pour effectuer les comparaisons avec les produits SAGE III du LOA sont issus de la quatrième version de l'algorithme d'inversion développé par l'équipe scientifique de POAM III. Les produits comparés sont :

1. Profils verticaux de concentration en ozone,
2. Profils verticaux de concentration en dioxyde d'azote,
3. Profils verticaux des coefficients d'extinction en aérosol à :
  - 448.5 nm (SAGE III) et 442.2 nm (POAM III),
  - 601.23 nm (SAGE III) et 603 nm (POAM III),
  - 1022.1 nm (SAGE III) et 1018 nm (POAM III)

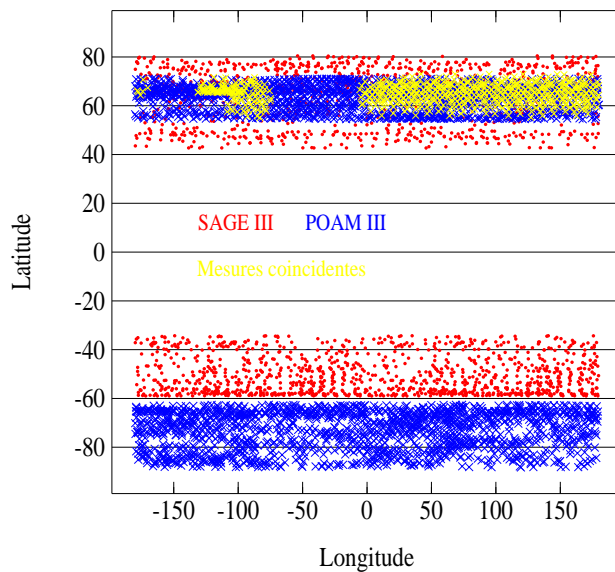


FIG. 4.42 – Distribution spatiale des mesures de SAGE III (en rouge), de POAM III (en bleu) et des coïncidences entre ces 2 instruments (en rose).

L'étude de validation des produits SAGE III obtenus par l'algorithme du LOA à l'aide des produits POAM III est également menée en deux étapes. La première est une comparaison des profils verticaux de la meilleure coïncidence spatio-temporelle entre SAGE III et POAM III et la deuxième, une étude statistique.

Dans cette étude, les différences relatives sont calculées suivant l'équation 4.22 en remplaçant la grandeur 'LaRC' par la grandeur 'POAM III'.

Le pas en altitude utilisé par POAM III (1 km) est différent de celui utilisé pour les produits SAGE III (0.5 km). Ainsi, les comparaisons se feront sur la grille de POAM III : de 0 à 60 km ou plus bas selon le produit.

Pour trouver les coïncidences entre 2 mesures SAGE III et POAM III, nous définissons un critère de coïncidence spatio-temporelle. Une distance maximale de 500 km entre les positions des points subtangents à 20 km de SAGE III et POAM III et un écart de 2h entre les 2 mesures constituent ce critère. Les coïncidences sont recherchées sur la période de temps pendant laquelle les 2 instruments étaient en fonctionnement : du 27 février 2002 au 5 décembre 2005. La figure 4.42 représente les positions de l'ensemble des mesures de SAGE III (en rouge), celles de POAM III (en bleu) ainsi que les mesures en coïncidence (selon le critère défini ci-dessus - en rose). Avec ce critère, 679 coïncidences ont été trouvées, toutes dans l'hémisphère nord. Les paramètres orbitaux de ces 2 instruments ne permettent pas de trouver des coïncidences dans l'hémisphère sud. Rappelons que, dans l'hémisphère nord, les occultations de POAM III correspondent toutes à un lever de soleil (par rapport au satellite) alors que celles de SAGE III correspondent à un coucher de soleil (par rapport au satellite). Ceci peut entraîner des différences de nature instrumentale. En effet, quand un capteur observe un lever de soleil, il sort de l'ombre de la Terre et commence ainsi sa mesure alors qu'il est à basse température. Au contraire, lorsqu'il observe un coucher, il est à haute température.

#### 4.4.2.1 Profils individuels

La meilleure coïncidence entre ces 2 satellites eut lieu le 10 avril 2005. La distance entre les 2 points subtangents n'est que de 14 km et la durée entre les deux mesures de 3 minutes. Ces 2 mesures ont eu lieu au nord-est de la Sibérie. Le tableau 4.3 présente les 2 événements correspondant à cette coïncidence.

	orbite	date	heure	latitude	longitude
SAGE III	01663920	10/04/2005	9h49	63.84	140.01
POAM III	36537	10/04/2005	9h52	64.92	139.78

TAB. 4.3 – Détail des événements SAGE III et POAM III les plus proches spatialement et temporellement.

Selon le profil de température NCEP (utilisés par SAGE III), la tropopause thermique est située à une altitude de 9.1 km. La température y est de 216 K, température la plus basse du profil. Pour POAM III, les profils utilisés sont issus des données du United Kingdom Met Office (UKMO). Les 2 profils de température sont en bon accord, les différences relatives sont inférieures à 3% en valeurs absolues.

##### L'ozone :

La figure 4.43 (en haut) présente les profils de concentration en ozone pour l'événement SAGE III (en rouge) et pour l'événement POAM III (en bleu) et les différences relatives associées. Dans la stratosphère, les 2 profils sont en très bon accord : les différences relatives sont comprises entre -5 et 12% entre 11 et 31 km puis elles sont négatives (c'est à dire  $O_3^{PIII} < O_3^{SIII}$ ) entre 32 et 50 km. Au-delà de 50 km, le profil du LOA devient très oscillant et les différences relatives augmentent. Rappelons que le profil d'ozone mésosphérique du LOA est très peu fiable.

##### Le dioxyde d'azote :

Les profils POAM III de dioxyde d'azote sont calculés de 20 à 40 km. Sur cette gamme d'altitude, les températures sont comprises entre 220 et 230 K. Ainsi, les sections efficaces choisies sont bien adaptées. La figure 4.43 (en bas) présente les profils de concentration en dioxyde d'azote pour l'événement SAGE III (en rouge) et pour l'événement POAM III (en bleu) ainsi que les différences relatives associées. La concentration en dioxyde d'azote issue de la mesure de POAM III est globalement inférieure à celle de SAGE III, sauf entre 24 et 26 km et à 36 km. Hormis les quelques valeurs positives, les différences relatives sont comprises entre -27 et -1%.

##### Les coefficients d'extinction aérosol à 448.5 nm (SAGE III) et 442.2 nm (POAM III) :

Les profils d'aérosols POAM III ne sont calculés que jusque 25 km. Même si les deux coefficients d'extinction des aérosols ne sont pas exactement à la même longueur d'onde, la comparaison entre les profils SAGE III et POAM III est effectué sans interpolation spectrale. D'un point de vue théorique, le coefficient d'extinction de POAM III devrait être supérieur à celui de SAGE III. En effet, si on considère une simple loi d'Angström pour modéliser les variations spectrales et un aérosol de taille moyenne

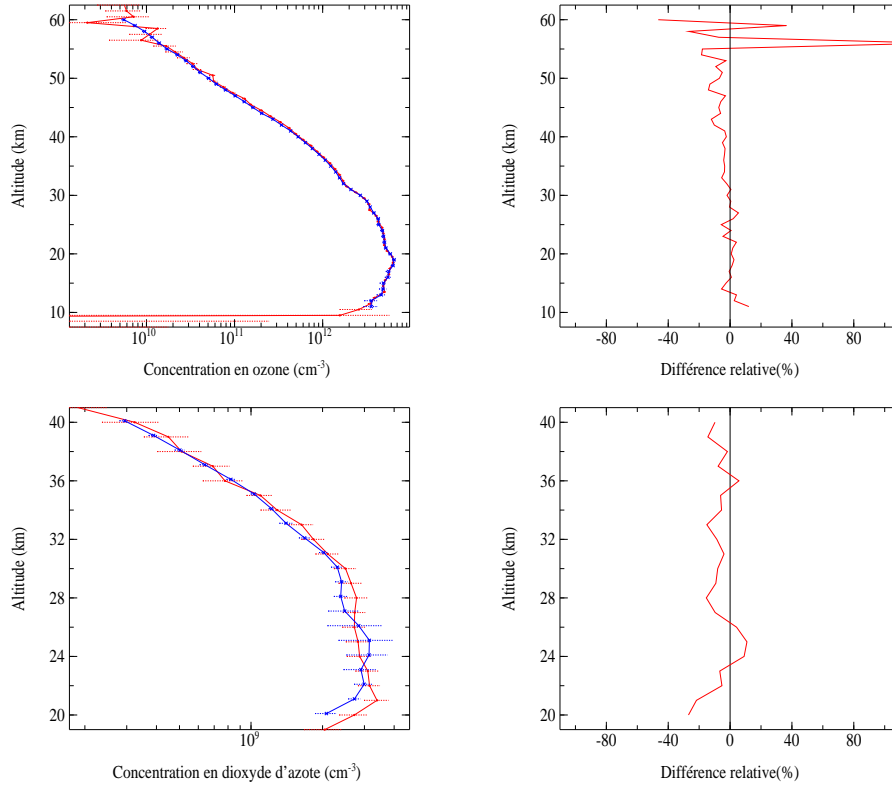


FIG. 4.43 – A gauche, profils verticaux des concentrations en ozone (en haut) et en dioxyde d’azote (en bas) pour la meilleure coïncidence spatio-temporelle SAGE III / POAM III. Les barres d’incertitude sont reportées en traits pointillés. Les profils SAGE III (LOA) sont en rouge et les profils POAM III en bleu. A droite, profils verticaux des différences relatives associées.

(coefficient d’Angström égal à 1), il vient :

$$k_{aer}(442.2) = k_{aer}(448.5) \left( \frac{442.2}{448.5} \right)^{-1} = 1.014 * k_{aer}(448.5) \quad (4.27)$$

Ainsi, la différence relative induite par les différences de longueur d’onde entre les deux instruments n’est que de 1.4%. Les résultats pour cet événement sont présentés sur la figure 4.44 (en haut). Comme on s’y attend, les différences relatives sont positives (sauf à 11, 21, 23 et 24 km). Elles sont comprises entre 2 et 30% pour les valeurs positives et entre -20 et -2% pour les différences négatives. A 21 km, le profil POAM III présente une singularité notable : le coefficient d’extinction devient plus faible. SAGE III présente également cette singularité mais elle est moins prononcée. En dépit de la différence de longueur d’onde, les coefficients d’extinction à 448.5 nm de SAGE III (LOA) sous-estiment ceux de POAM III pour cet événement.

**Le coefficient d’extinction aérosol à 601.23 nm (SAGE III) et 603 nm (POAM III) :**

La différence de longueur d’onde entre ces 2 canaux induirait, dans le cas de mesures SAGE III et POAM III identiques une différence relative seulement égale à -0.3% en considérant aussi les variations spectrales selon la loi d’Angström (coefficient d’Angström



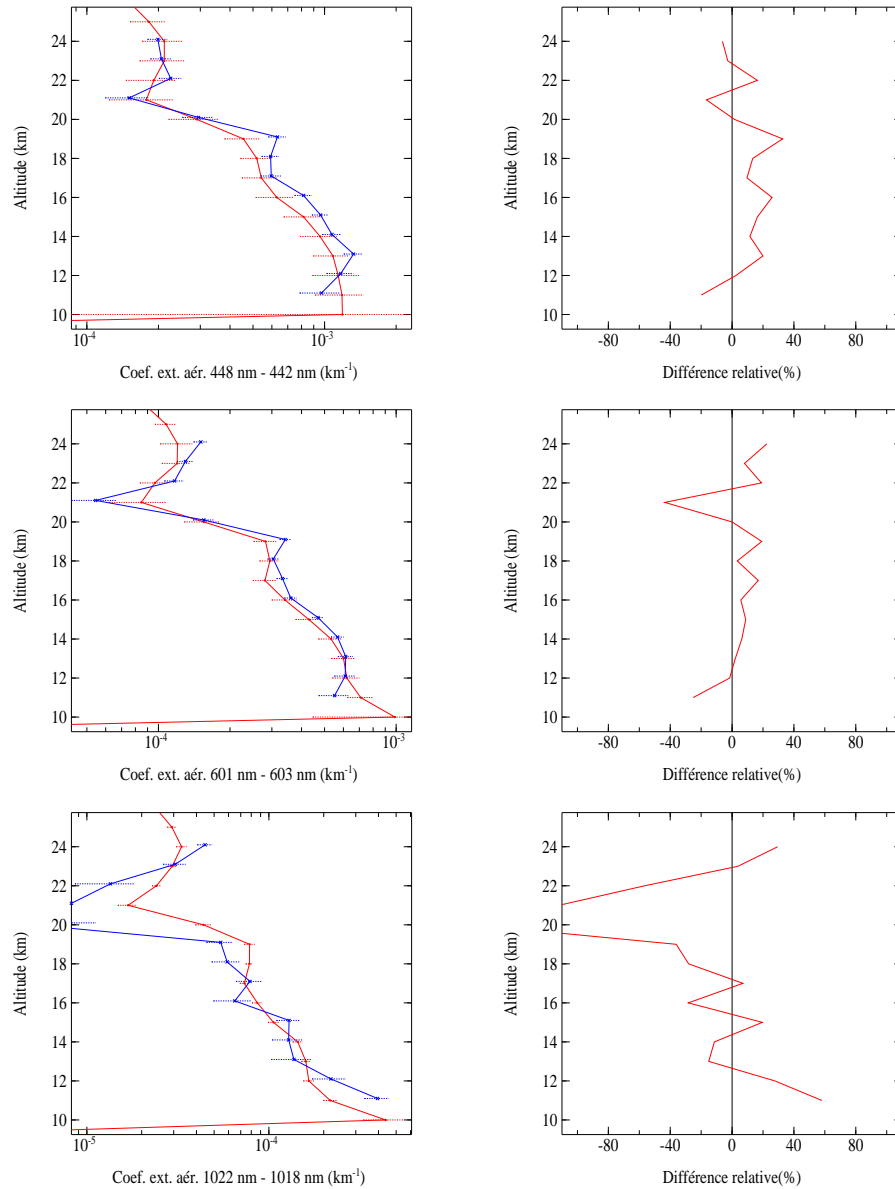


FIG. 4.44 – Identique à la figure 4.43 mais pour les coefficients d'extinction des aérosols. En haut : 448.5 nm pour SAGE III et 442.2 pour POAM III. Au milieu : 601.23 nm pour SAGE III et 603 nm pour POAM III. En bas : 1022.1 pour SAGE III et 1018 pour POAM III.

égal à 1). La figure 4.44 (au milieu) présente les résultats de ces comparaisons. Globalement, les différences relatives sont aussi positives (sauf à 11, 12 et 21 km). A 21 km, le profil POAM III présente le même "trou" également observé sur le profil SAGE III mais avec une amplitude moindre. Les différences relatives positives sont comprises entre 0 et 20%. En dehors de la singularité observée par POAM III autour de 21 km, les coefficients d'extinction à 601 nm de SAGE III (LOA) sous-estime également ceux de POAM III pour cet événement.

#### **Le coefficient d'extinction aérosol à 1022.1 nm (SAGE III) et 1018 nm (POAM III) :**

Avec les mêmes hypothèses que celles faites précédemment, la différence relative générée par la différence de longueurs d'onde n'est ici que de 0.4%. Les résultats sont présentés sur la figure 4.44 (en bas). Entre 18 et 22 km, les différences relatives sont négatives. Sur cette gamme d'altitude, elles sont comprises entre -160% et -29%. Ces fortes différences sont essentiellement dues à la singularité observée par POAM III autour de 21 km. En-dessous de 18 km, le profil POAM III oscille autour du profil SAGE III. Les différences relatives sont comprises entre -30 et 60%. La comparaison entre les 2 profils n'aboutit pas pour cet événement et à cette longueur d'onde à un accord satisfaisant.

En conclusion de cette comparaison concernant la meilleure coïncidence spatio temporelle entre SAGE III et POAM III, un bon accord a été mis en évidence pour les profils d'ozone stratosphérique (problème dans la mésosphère pour le profil SAGE III) et pour le dioxyde d'azote (différence relative autour de -10%). Pour les aérosols, les comparaisons sont moins satisfaisantes. A 448 nm et 600 nm, les coefficients d'extinction SAGE III sont inférieurs à ceux de POAM III. A 1020 nm, les deux profils ne sont pas en bon accord.

#### **4.4.2.2 Etude statistique**

L'étude statistique est menée sur les 679 événements SAGE III et POAM III en coïncidence spatio-temporelle. Ils sont situés entre 55 et 75° nord. Nous rappelons ici le critère utilisé : 500 km entre les deux points subtangents et 2 heures entre les deux mesures. En plus de ce critère de coïncidence, nous avons éliminé les coïncidences pour lesquelles un des événements est susceptible d'être perturbé par d'éventuels nuages stratosphériques polaires. Les événements dont la température stratosphérique décroît en-dessous de 198 K n'ont pas été considérés. 16 coïncidences ont ainsi été supprimées conduisant à un ensemble de 663 coïncidences. On rappelle ici que les mesures de POAM III au nord sont effectuées lors d'un lever de soleil et celles de SAGE III lors d'un coucher de soleil (pour le satellite). La moyenne des différences relatives, les dispersions sur le calcul de cette moyenne et la RMS des différences relatives seront calculées à chaque altitude pour chaque grandeur considérée (concentration en ozone, dioxyde d'azote et coefficient d'extinction aux trois longueurs d'onde comparables).

#### **L'ozone :**

La figure 4.45 (à gauche) présente les résultats obtenus pour la concentration en ozone. Il apparaît en moyenne que les profils verticaux de concentration en ozone déduits des mesures des deux instruments sont en bon accord. Entre 14 et 40 km, les moyennes des différences relatives sont comprises entre -4 et 1% avec des dispersions entre 8 et 20% et

des RMS des différences relatives entre 9 et 23%. Au-dessus de 40 km, on constate un biais négatif de l'ordre de -8 à -7%. Au-delà de 50 km, si les différences relatives moyennes n'excèdent pas les -10%, les dispersions augmentent avec l'altitude, atteignant 40% à 60 km. Les RMS atteignent également 40% à 60 km. En-dessous de 14 km, les différences relatives sont en moyenne entre -10 et 10% mais les écarts-types sont supérieurs à 20%. Il ressort de cette étude que le profil d'ozone issu des mesures SAGE III (LOA) sont en très bon accord entre 14 et 50 km.

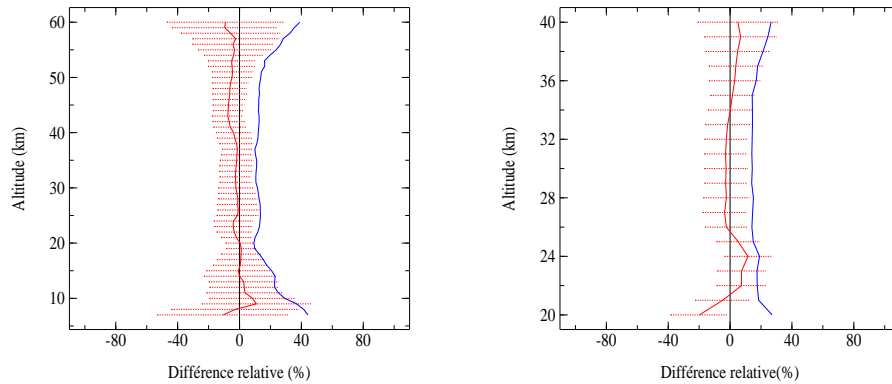


FIG. 4.45 – Profil vertical des moyennes des différences relatives (en rouge) entre les concentrations en ozone (à gauche) et en dioxyde d'azote (à droite). Les barres de dispersion sur le calcul de cette moyenne sont représentées en pointillés. Le profil de la RMS des différences relatives est représenté en bleu.

#### Le dioxyde d'azote :

Les résultats concernant la comparaison des produits  $\text{NO}_2$  SAGE III (LOA) et POAM III sont présentés sur la figure 4.45 (à droite).

On constate un biais positif de l'ordre de 10% entre 22 et 25 km ( $\text{NO}_2^{\text{POAM III}} > \text{NO}_2^{\text{SAGE III}}$ ). L'étude statistique fournit des résultats satisfaisants. En effet, les moyennes des différences relatives sont comprises entre -3 et 6% entre 25 et 40 km. Sur cette gamme d'altitude, les écarts-types sont compris entre 10 et 25%. Les RMS sont de l'ordre de 15 à 25%.

Compte tenu des difficultés inhérentes à la chimie du dioxyde d'azote très rapide au crépuscule, les comparaisons effectuées fournissent une bonne inter-validation des profils de concentration de  $\text{NO}_2$  entre SAGE III (LOA) et POAM III.

#### Le coefficient d'extinction des aérosols à 448.5 nm (SAGE III) et 442.2 nm (POAM III) :

On rappelle ici que la différence de longueur d'onde entre les canaux de SAGE III et de POAM III induit une différence relative de l'ordre de 1.4%.

Les résultats des comparaisons pour les aérosols à ces longueurs d'onde sont présentés sur la figure 4.46 (figure du haut).

On constate un biais positif (10%) entre 15 et 18 km et un biais négatif (-20%) entre 21 et 25 km. Les différences relatives moyennes sont comprises entre -20 et 10% entre 7 et 25 km. Sur cette gamme d'altitude, les dispersions et les RMS des différences relatives sont comprises entre 20 et 45%.

En moyenne, l'accord entre les profils du coefficient d'extinction des aérosols à ces lon-

guez d'onde issus des mesures de SAGE III (LOA) et de POAM III est assez bon.

**Le coefficient d'extinction aérosol à 601.23 nm (SAGE III) et 603 nm (POAM III) :**

Les résultats à cette longueur d'onde sont présentés sur la figure 4.46 (figure du milieu). Un biais négatif (de l'ordre de -15%) est constaté entre 8 et 12 km. En moyenne, les profils SAGE III (LOA) et POAM III en coïncidence sont en relativement bon accord entre 13 et 25 km. Les différences relatives moyennes sont comprises entre -2 et 5% avec des dispersions de l'ordre de 20%. Les RMS des différences relatives sont de l'ordre de 20 à 25%. En-dessous de 13 km, les différences relatives sont assez importantes (entre -15 et 20%) avec des écarts-types et des RMS supérieurs à 30%. Ainsi, nous ne pouvons conclure sur un bon accord moyen entre les profils SAGE III (LOA) et POAM III pour les aérosols à 600 nm qu'entre 13 et 25 km.

**Le coefficient d'extinction aérosol à 1022.1 nm (SAGE III) et 1018 nm (POAM III) :**

Les résultats sont présentés sur la figure 4.46 (figure du bas).

Les différences relatives moyennes sont le plus souvent positives ( $k_{ext}^{SIII} < k_{ext}^{PIII}$ ). Entre 12 et 15 km, on constate un biais positif (de l'ordre de 15 à 20%). Sur toute la gamme d'altitude étudiée, les différences relatives moyennes entre les profils d'extinction des aérosols à 1020 nm issus des mesures coïncidentes de SAGE III (LOA) et POAM III sont comprises entre -20 et 20%. Les RMS des différences relatives sont de l'ordre de 30 à 40% tout comme les écarts types. Du fait des fortes valeurs des écarts-types et des RMS, nous ne pouvons conclure que sur un accord assez bon entre les profils d'aérosols à 1020 nm entre ces deux instruments.

### 4.4.3 Conclusions

Les produits SAGE III (LOA) et POAM III sont globalement en bon accord. En moyenne, les concentrations en ozone restituées par les deux instruments sont en bon accord entre 10 et 50 km (différences relatives de l'ordre de -4 à 1% entre 10 et 40 km et RMS entre 10 et 20%). On note un biais de l'ordre de 8% entre les deux mesures au-dessus de 40 km. Pour le dioxyde d'azote, l'accord est également bon en moyenne (différences relatives entre -3 et 6% au-dessus de 25 km et RMS de l'ordre de 15 à 20%). On note également un biais de 10% entre 22 et 25 km. Pour les coefficients d'extinction de aérosols dans les trois canaux comparables, les différences relatives sont en moyenne comprises entre -20 et 20% mais avec des RMS relativement moins bon (de l'ordre de 20 à 40% approximativement). Ainsi, on conclut que les produits aérosols SAGE III (LOA) et POAM III sont en assez bon accord. Ces différences peuvent être notamment attribuées au fait que SAGE III observe un coucher de soleil et POAM III un lever dans l'hémisphère nord. Ces résultats sont en bon accord avec les résultats de l'étude de Thomason et al. [2007].

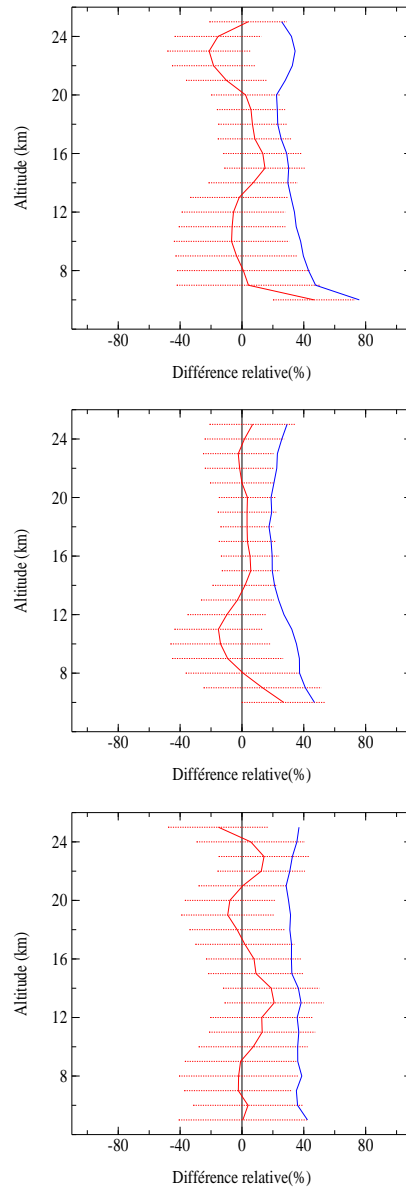


FIG. 4.46 – Identique à la figure 4.45 mais pour les coefficients d'extinction des aérosols. En haut : 448.5 nm pour SAGE III et 442.2 pour POAM III. Au milieu : 601.23 nm pour SAGE III et 603 nm pour POAM III. En bas : 1022.1 pour SAGE III et 1018 pour POAM III.

## 4.5 Validation avec les produits de SAGE II

### 4.5.1 Description de l'algorithme d'inversion de SAGE II

Les produits SAGE II utilisés dans le cadre de la validation des produits SAGE III - LOA nous ont été fournis par l'équipe du LaRC. Ils sont issus de la version 6.20 de l'algorithme d'inversion développé au LaRC [Chu et al., 1989, Thomason et al., 2007]. L'approche utilisée dans le processus d'inversion des transmissions de SAGE II est semblable à celle utilisée pour SAGE III (LaRC). Tout d'abord, les épaisseurs optiques tangentes de diffusion moléculaire sont calculées avec les profils de température et de pression NCEP. Les contributions de l'absorption des espèces gazeuses et de l'extinction des aérosols à 452, 525 et 1020 nm sont déduites des épaisseurs optiques tangentes corrigées de la diffusion moléculaire par une méthode de moindres carrés. L'épaisseur optique tangente des aérosols dans les canaux 'dédiés' aux espèces gazeuses (448 nm pour NO<sub>2</sub> et 600 nm pour O<sub>3</sub>) sont évaluées à l'aide d'une combinaison linéaire des épaisseurs optiques tangentes des aérosols à 452, 525 et 1020 nm. L'épaisseur optique tangente d'extinction des aérosols à 386 nm est ensuite déduite simplement par soustraction des contributions de l'absorption de l'ozone et du dioxyde d'azote et de la diffusion moléculaire à l'épaisseur optique tangente totale. La procédure s'achève par une inversion spatiale basée sur la méthode d'inversion non linéaire de Chahine modifiée par Twomey [1975].

Les profils verticaux de concentration en ozone issus des mesures de SAGE II ont été validés par Cunnold et al. [1989]. Le produit NO<sub>2</sub> a été validé par Cunnold et al. [1991]. Les coefficients d'extinction des aérosols ont quant à eux été validés notamment par Ackerman et al. [1989].

### 4.5.2 Comparaisons

Les comparaisons entre SAGE II et SAGE III - LOA concernent les produits suivants :

1. Les profils verticaux de concentration en ozone
2. Les profils verticaux de concentration en dioxyde d'azote
3. Les profils des coefficients d'extinction des aérosols à :
  - 386 nm (SAGE II) et 384.2 nm (SAGE III)
  - 452 nm (SAGE II) et 448.5 nm (SAGE III)
  - 525 nm (SAGE II) et 520.3 nm (SAGE III)
  - 1020 nm (SAGE II) et 1022.1 nm (SAGE III)

L'étude de validation sera également menée en deux étapes. Dans la première étape, nous comparerons les profils issus des deux événements SAGE II et SAGE III les plus proches temporellement et spatialement et ensuite, nous effectuerons une étude sur l'ensemble des événements SAGE II et SAGE III en coïncidence spatio-temporelle. Le critère de coïncidence choisi est le même que celui utilisé pour la recherche de coïncidences entre SAGE III et POAM III (voir section 4.4) : 500 km et 2h entre les 2 mesures. La période de temps utilisée s'étend d'avril 2002 à juin 2005. Nous rappelons ici que la couverture spatiale des mesures de SAGE II s'étend de 72° sud à 72° nord et celle de SAGE III de 50 à 80° nord et de 30 à 50° sud. Ainsi, les coïncidences ont été trouvées aux latitudes couvertes par SAGE III (voir figure 4.47) : il y en a 328 dans l'hémisphère nord et 185

dans le sud.

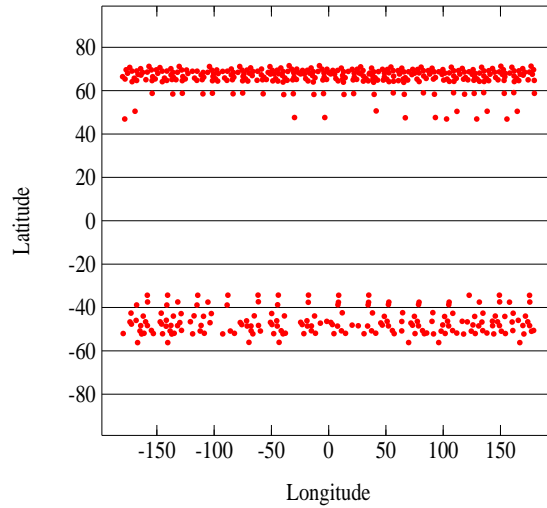


FIG. 4.47 – Distribution spatiale des coïncidences spatio-temporelles entre les mesures de SAGE II et de SAGE III entre avril 2002 et juin 2005.

Les différences relatives sont calculées dans ce paragraphe selon l'équation 4.22 en remplaçant la mesure SAGE III (LaRC) par la mesure SAGE II.

Notons qu'une étude préalable de comparaisons entre les coefficients d'extinction des aérosols de SAGE II et de SAGE III (produits officiels du LaRC) a été menée par Yue et al. [2005]. En résumé, l'accord trouvé est de l'ordre de 30% en valeurs absolues entre 18 et 26 km pour toutes les longueurs d'onde. Ils ont constaté que les coefficients d'extinction des aérosols à 385 nm issus de la mesure de SAGE III étaient supérieurs à ceux issus de la mesure SAGE II et l'inverse à 1020 nm.

#### 4.5.2.1 Profils individuels

Nous étudions ici les 2 profils SAGE II et SAGE III les plus proches temporellement et spatialement. Cette coïncidence se déroula le 25 octobre 2003 au nord-est des îles Kerguelen (48° sud et 78° est). La distance entre les points subtangents des deux mesures (à 20 km) n'est que de 23 km et l'écart temporel de quelques secondes. L'événement SAGE II correspond ici à un coucher de soleil (tout comme SAGE III). L'analyse du profil de température fourni avec la mesure SAGE III révèle une altitude de la tropopause thermique à 11 km (pour une température de 214 K) et un minimum de 210 K à 18 km.

##### L'ozone :

La figure 4.48 montre les comparaisons entre ces deux mesures coïncidentes concernant les profils d'ozone (en haut).

Il apparaît que les deux profils d'ozone sont en très bon accord entre 15 et 50 km : les différences relatives sont comprises entre -10 et 5%. Au-dessus de 50 km, le profil d'ozone issu de la mesure SAGE III (LOA) oscille autour du profil de SAGE II qui paraît plus lissé à ces altitudes. Dans la basse stratosphère, en-dessous de 15 km, la concentration

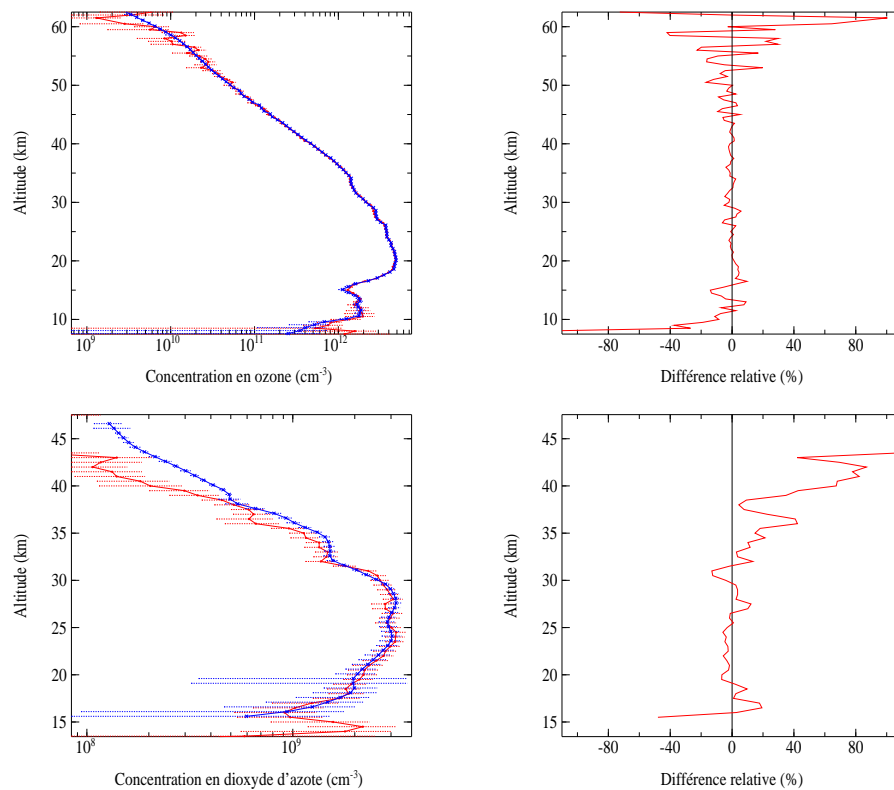


FIG. 4.48 – A gauche, profils verticaux des concentrations en ozone (en haut) et en dioxyde d’azote (en bas) pour la meilleure coïncidence spatio-temporelle SAGE III / SAGE II. Les profils SAGE III sont en rouge et les profils SAGE II en bleu. A droite, profils verticaux des différences relatives associées.

d’ozone SAGE II est inférieure à celle de SAGE III. Les différences relatives descendent même sous les -30% en dessous de 9 km.

#### Le dioxyde d’azote :

La comparaison des profils de concentration en dioxyde d’azote pour ces deux événements est présentée sur la figure 4.48 (en bas).

Les températures étant supérieures à 210 K, on peut considérer que les sections efficaces utilisées dans l’algorithme du LOA sont bien adaptées et ne pourront donc pas être la cause d’éventuelles différences entre les deux produits. Entre 17 et 31 km, l’accord entre les deux profils est bon : les différences relatives sont comprises entre -6 et 10%. Au-dessus de 31 km, les différences relatives sont positives ( $NO_2^{SII} > NO_2^{SIII}$ ) atteignant plus de 100% au-dessus de 44 km.

#### Le coefficient d’extinction aérosol à 384.26 nm (SAGE III) et 386 nm (SAGE II) :

En considérant une loi d’Angström pour modéliser les variations spectrales et un coefficient d’Angström égal à 1, la différence relative induite par la différence de longueur d’onde n’est que de 0.2%. Les résultats des comparaisons pour les aérosols à cette longueur d’onde sont présentés sur la figure 4.49 (en haut).

Les coefficients d’extinction issus de la mesure de SAGE II sont inférieurs à ceux issus



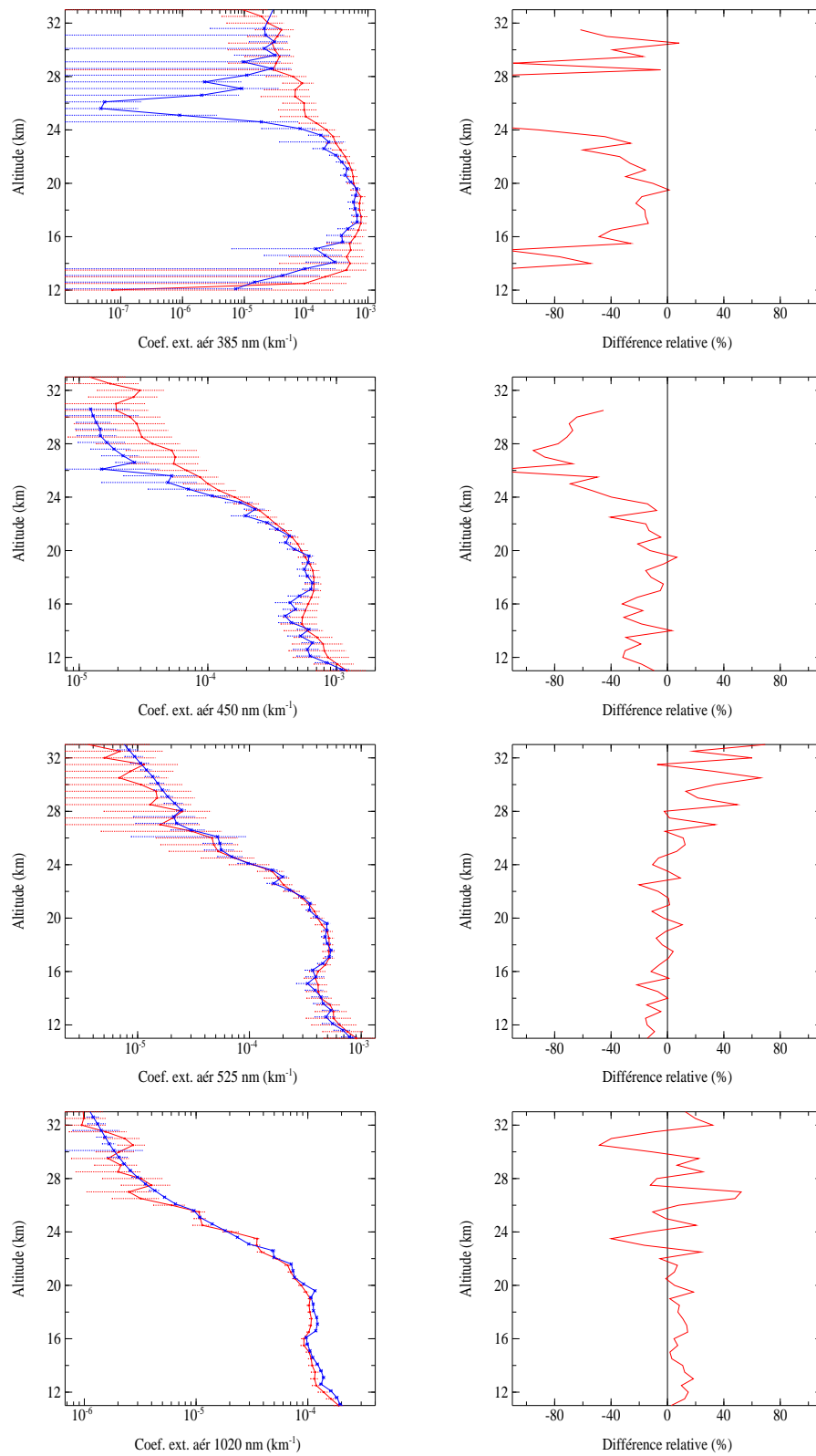


FIG. 4.49 – Identique à la figure 4.48 mais pour les coefficients d'extinction des aérosols. Du haut en bas : 384.2 nm pour SAGE III et 386 nm pour SAGE II, 448.5 nm pour SAGE III et 452 nm pour SAGE II, 520.3 nm pour SAGE III et 525 nm pour SAGE II, 1022.1 nm pour SAGE III et 1020 nm pour SAGE II.

de SAGE III sur toute la gamme d'altitude étudiée (sauf à 12, 19.5 et 30.5 km). Les différences relatives sont comprises entre -100% et -10%.

**Le coefficient d'extinction aérosol à 448.5 nm (SAGE III) et 452 nm (SAGE II) :**

Ici, la différence relative induite par les différences de longueur d'onde n'est que de l'ordre de 0.4%. Les résultats des comparaisons sont présentés sur la figure 4.49 (deuxième figure en partant du haut).

Comme pour les comparaisons précédentes, les coefficients d'extinction des aérosols SAGE II à 452 nm sont inférieurs aux coefficients d'extinction des aérosols de SAGE III à 448.5 nm sur toute la gamme d'altitude étudiée sauf à 14 et 19.5 km. Les différences relatives sont comprises entre -40 et -20% jusque 24 km puis au-dessus de cette altitude, elles diminuent fortement atteignant -120% à 26 km.

**Le coefficient d'extinction aérosol à 520.31 nm (SAGE III) et 525 nm (SAGE II) :**

Ici, les différences de longueurs d'onde induisent des différences relatives de l'ordre de 0.45%. Les résultats de la comparaison à ces longueurs d'onde sont présentés sur la figure 4.49 (deuxième figure en partant du bas).

Entre 10 et 24 km, les différences relatives sont le plus souvent négatives ( $k_{ext}^{SII} < k_{ext}^{SIII}$ ). Elles sont comprises entre -20 et 10%. Au-dessus de 24 km, elles sont positives (sauf à quelques altitudes). Elles sont comprises entre -6 et 60%. Globalement, l'accord est meilleur à cette longueur d'onde que pour les deux comparaisons précédentes.

**Le coefficient d'extinction aérosol à 1022.1 nm (SAGE III) et 1020 nm (SAGE II) :**

La différence de longueur d'onde n'implique ici que -0.1% de différences relatives. Les courbes du bas de la figure 4.49 présentent les résultats à ces longueurs d'onde.

Il apparaît qu'en-dessous de 21 km, les différences relatives sont positives ( $k_{ext}^{SII} > k_{ext}^{SIII}$ ). Sur cette gamme d'altitude, elles sont comprises entre 1 et 20%. Au-dessus de 21 km, les différences relatives sont tantôt positives, tantôt négatives, comprises entre -50 et 50%.

#### 4.5.2.2 Etude statistique

L'étude statistique est menée ici sur les événements SAGE II et SAGE III en coïncidence spatio-temporelle. Un filtre sur la température (inférieure à 198 K pour les événements de hautes latitudes nord ou sud) a été appliqué afin d'éliminer les mesures affectées par d'éventuels PSC menant à un total de 499 événements à étudier : 314 dans l'hémisphère nord et 185 dans l'hémisphère sud. Il est à noter que, pour toutes les coïncidences trouvées, hémisphères nord et sud confondus, les événements SAGE II correspondent à un coucher de soleil alors que pour SAGE III, les événements correspondent à un coucher au nord et à un lever au sud. Cependant, aucune différence interhémisphérique dans les comparaisons moyennes n'a été mise en évidence. Ainsi, nous ne présenterons ici que les comparaisons effectuées sur l'ensemble des coïncidences (sans distinction d'hémisphère).

**L'ozone :**

Les résultats de l'étude sur l'ensemble des coïncidences entre les mesures SAGE II et SAGE III concernant la concentration en ozone sont présentés sur la figure 4.50 (à gauche). En moyenne, les profils de concentration en ozone sont en très bon accord entre 15 et 55 km : les différences relatives sont comprises entre -7 et 7% avec des dispersions inférieures à 25%. Les RMS des différences relatives sont entre 6 et 30%. Au-dessus de 55 km, les différences relatives, les écarts-types et les RMS augmentent fortement. En-dessous de 15 km, les différences relatives sont en moyenne négatives (c'est à dire  $O_3^{SII} < O_3^{SIII}$ ) mais avec de fortes dispersions.

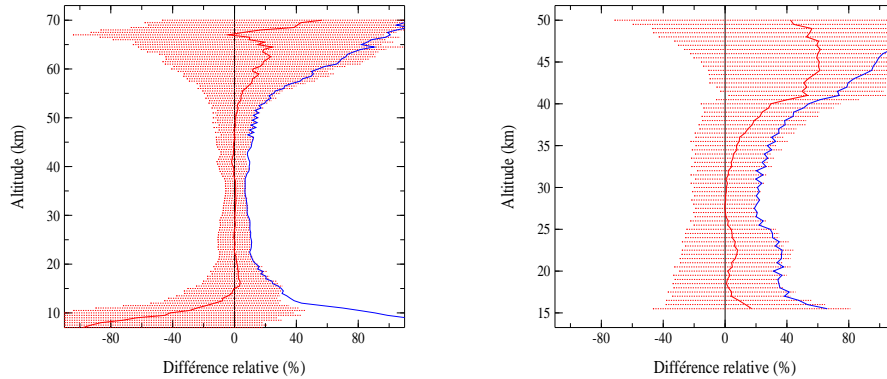


FIG. 4.50 – Profils verticaux des moyennes des différences relatives (en rouge) entre les concentrations en ozone (à gauche) et en dioxyde d'azote (à droite) des événements SAGE III et SAGE II en coïncidence. Les dispersions sur le calcul de cette moyenne sont représentées par des segments horizontaux. Le profil de la RMS des différences relatives est représenté en bleu.

#### Le dioxyde d'azote :

Les courbes de droite de la figure 4.50 représentent les résultats des comparaisons pour les concentrations en dioxyde d'azote.

Les différences relatives moyennes entre les concentrations issues des mesures des deux instruments sont faibles entre 16 et 36 km : elles sont comprises entre 0 et 10%. Cependant, les dispersions et les RMS des différences relatives sont relativement importantes (tout deux compris entre 20 et 45%), ce qui nous permet simplement de conclure sur un relativement bon accord entre les profils de concentration en dioxyde d'azote de SAGE II et SAGE III. Au delà de 36 km, les moyennes et RMS des différences relatives et les dispersions augmentent fortement.

#### Le coefficient d'extinction aérosol à 384.26 nm (SAGE III) et 386 nm (SAGE II) :

Les comparaisons entre les profils verticaux des coefficients d'extinction des aérosols à ces longueurs d'onde sont présentées sur la figure 4.51 (en haut à gauche).

Au-dessus de 12 km, les moyennes des différences relatives sont négatives (c'est à dire  $k_{ext}^{SII} < k_{ext}^{SIII}$ ). On constate un biais de l'ordre de -40 à -20% entre 12 et 24 km et un biais plus important ( $\simeq -60\%$ ) au-dessus de 27 km. Les dispersions sont importantes : de 20% vers 18 km à plus de 100% aux plus hautes altitudes étudiées.

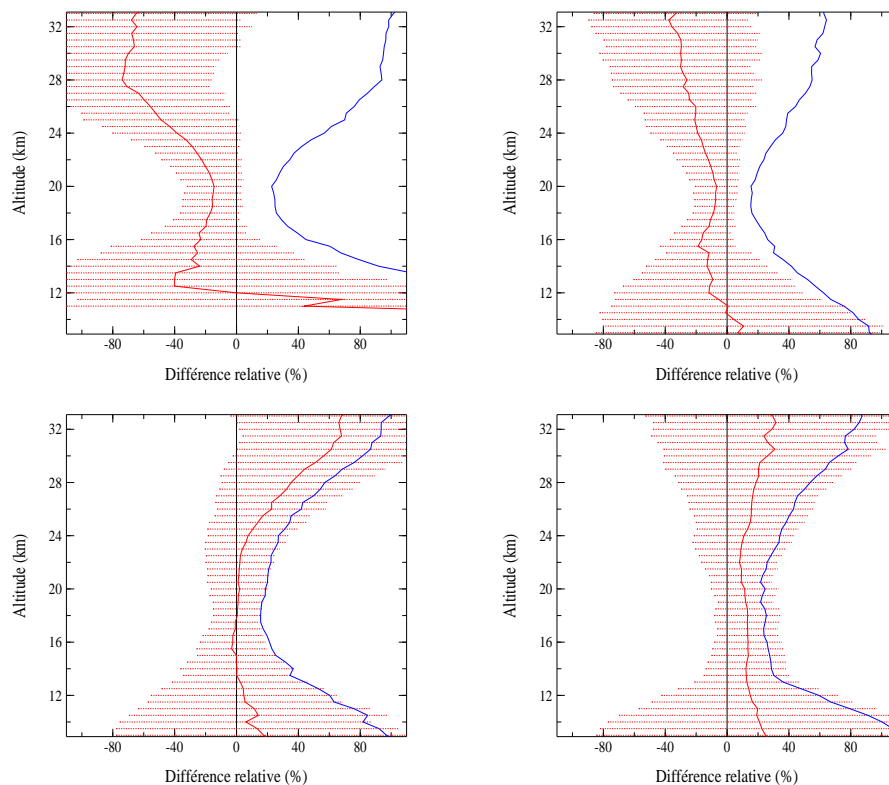


FIG. 4.51 – Identique à la figure 4.50 mais pour les coefficients d’extinction des aérosols. En haut à gauche : 384.2 nm pour SAGE III et 386 nm pour SAGE II. En haut à droite : 448.5 nm pour SAGE III et 452 nm pour SAGE II. En bas à gauche : 520.3 nm pour SAGE III et 525 nm pour SAGE II. En bas à droite : 1022.1 nm pour SAGE III et 1020 nm pour SAGE II.

**Le coefficient d’extinction aérosol à 448.5 nm (SAGE III) et 452 nm (SAGE II) :**

Les courbes en haut à droite de la figure 4.51 présentent les résultats des comparaisons entre les profils verticaux d’extinction des aérosols à ces longueurs d’onde.

Là aussi, les moyennes des différences relatives sont négatives ( $k_{ext}^{SII} < k_{ext}^{SIII}$ ) au-dessus de 10 km. Sur cette gamme d’altitude, on constate un biais négatif (-40 à -10%), les différences relatives augmentant (en valeurs absolues avec l’altitude). Le meilleur accord est obtenu entre 17 et 22 km (dans la couche d’aérosols de Junge) : différences relatives de -10 à -6%, écarts-types et RMS inférieurs à 20%. Au-dessus de 22 km, les dispersions et les RMS augmentent (de 20 à 60%).

**Le coefficient d’extinction aérosol à 520.31 nm (SAGE III) et 525 nm (SAGE II) :**

La figure 4.51 présente les résultats des comparaisons à ces longueurs d’onde (en bas à gauche).

En-dessous de 25 km, les différences relatives sont proches de zéro mais avec des écarts-types compris entre 16 et 50%. Au-dessus de 25 km, les différences relatives augmentent fortement, dépassant 60% au-dessus de 30 km.

### Le coefficient d'extinction aérosol à 1022.1 nm (SAGE III) et 1020 nm (SAGE II) :

Les résultats des comparaisons à ces longueurs d'onde sont présentés sur la figure 4.51 (en bas à droite).

Il apparaît que les différences relatives sont en moyenne positives ( $k_{ext}^{SII} > k_{ext}^{SIII}$ ). Un biais de 8 à 30% entre les deux produits est constaté. Le meilleur accord moyen est encore obtenu dans la couche de Junge (entre 16 et 23 km) : les différences relatives moyennes sont comprises entre 8 et 12% avec des dispersions inférieures à 30%. Au-dessus de 23 km, les dispersions et les RMS augmentent fortement.

## 4.5.3 Conclusions

Les concentrations en ozone et en dioxyde d'azote issues des mesures SAGE II et SAGE III (LOA) sont en bon accord (entre 15 et 55 km pour  $O_3$  et entre 16 et 36 km pour  $NO_2$ ). On constate également que les coefficients d'extinction à 385 et 448 nm sont en désaccord : les coefficients d'extinction de SAGE III surestiment ceux de SAGE II. A 1020 nm, c'est l'inverse : SAGE III sous-estime SAGE II. A 525 nm, on obtient un bon accord en-dessous de 25 km. Au-dessus de cette altitude, SAGE III sous-estime SAGE II. Ces résultats sont en bon accord avec l'étude faite par Yue et al. [2005] avec les produits SAGE III officiels.

## 4.6 Validation avec les produits de SPIRALE

### 4.6.1 Description de l'instrument SPIRALE

SPIRALE (SPectroscopie Infra-Rouge par Absorption de Lasers Embarqués) est un spectromètre à 6 diodes laser accordables embarquable sous ballon stratosphérique [Moreau et al., 2005]. Il a été réalisé par le LPCE (Laboratoire de Physique et Chimie de l'Environnement - Orléans) avec la collaboration de l'ONERA (Office Nationale d'Etudes et de Recherches Aérospatiales). Il est consacré à la mesure in situ à haute résolution spatiale et temporelle d'espèces chimiques depuis la haute troposphère jusqu'à 35 km à la montée aussi bien qu'à la descente du ballon. Les espèces chimiques mesurables par SPIRALE peuvent être à longue durée de vie ( $CO$ ,  $O_3$ ,  $CH_4$ ,  $N_2O$ ,  $COF_2$ ,  $CO_2$ ,  $HCl$ ) ou à courte durée de vie ( $NO_2$ ,  $HNO_3$ ,  $NO$ ,  $HOCl$ ,  $H_2O_2$ ,  $OCS$ ).

Les rayonnements issus des diodes laser sont injectés dans une cellule à l'air libre à réflexions multiples (de type Herriott) placée sous la nacelle. Cette cellule est constituée de 2 miroirs distants de 3.5 m autorisant un trajet optique de 300 à 500 m. Les longueurs d'onde des rayonnements émis par chacune des diodes laser sont ajustables en réglant la température et le courant d'injection  $i_0$  dans chacune d'elles. Différentes micro-fenêtres spectrales infrarouges (de 3 à 10  $\mu m$ ) sont ainsi choisies selon la nature des espèces visées. Par exemple, le tableau 4.4 liste les micro-fenêtres utilisées par chaque diode lors du vol de Janvier 2003 à Kiruna (Suède).

La résolution spatiale de l'instrument dépend de la vitesse de l'ascension (ou de la descente) du ballon et de la fréquence d'acquisition des mesures. Cette dernière est de 1 Hz permettant une résolution verticale de 5 m approximativement.

La technique de mesure s'appuie sur l'absorption directe : l'intensité du rayonnement

Diode laser	Nombre d'onde central (cm <sup>-1</sup> )	Largeur spectrale (cm <sup>-1</sup> )	Espèces cibles
1	2082.15	0.59	CO, O <sub>3</sub> , CO <sub>2</sub>
2	2925.90	0.54	HCl
3	1262.10	0.50	N <sub>2</sub> O, CH <sub>4</sub>
4	diode non installée		
5	1598.60	0.54	NO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O
6	1701.50	0.45	HNO <sub>3</sub> , O <sub>3</sub>

TAB. 4.4 – Liste des espèces mesurées lors du vol de SPIRALE à Kiruna en janvier 2003. D'après Moreau et al. [2005].

au nombre d'onde  $\nu$  transmis après un trajet  $L$  dans la cellule s'écrit d'après la loi de Beer-Lambert :

$$I(\nu) = I_0(\nu) \exp(-\sigma(\nu) nL) \otimes g_l(\nu) \quad (4.28)$$

où  $I_0(\nu)$  et  $I(\nu)$  sont respectivement les intensités incidentes et transmises,  $\sigma(\nu)$  la section efficace d'absorption de l'espèce,  $n$  la concentration de l'espèce considérée,  $L$  la longueur du trajet optique et  $g_l(\nu)$  le profil normalisé du faisceau laser (décrit par une gaussienne ou une lorentzienne). Les informations spectroscopiques utilisées sont issues de la base de donnée HITRAN 2004 [Rothman et al., 2005].

L'objectif de l'algorithme développé au LPCE est de déduire de la mesure du signal absorbé la concentration  $n$  de l'espèce absorbante. Pour ce faire, un spectre synthétique est calculé à partir des données spectroscopiques et instrumentales. Plutôt que d'utiliser ce spectre pour retrouver la concentration (en la faisant varier jusqu'à minimiser les écarts entre le spectre synthétique et le spectre mesuré), l'algorithme utilise un ajustement par la technique des dérivées secondes. La procédure est représentée sur la figure 4.52 (figures du haut et du bas, celle du milieu correspondant à la méthode standard d'ajustement des spectres d'absorption). Tout d'abord, le signal sans absorption est reconstruit. Ensuite, la dérivée seconde du rapport entre la dérivée du signal mesuré et ce signal sans absorption est ajustée à la dérivée seconde du spectre calculé. Quantitativement, la méthode des dérivées secondes est plus précise que la méthode standard par ajustement des signaux dans le cas où de nombreuses raies d'absorption d'espèces différentes interfèrent dans la micro-fenêtre considérées [Moreau et al., 2005].

### 4.6.2 Spécificité du vol de janvier 2003

Le vol de SPIRALE du 21 janvier 2003 à Kiruna (67.7° nord - 21.1° est) a été utilisé durant mes travaux de thèse à des fins de comparaisons avec les produits ozone et dioxyde d'azote de l'instrument SAGE III. Ce vol nocturne débuta à 19h (TU) et s'acheva à 21h (TU). A cette période de l'année et à cet endroit, le soleil se lève vers 9h et se couche vers 13h (TU). Les mesures ont été collectées de 10 à 32 km lors de la montée du ballon. Cependant, selon l'espèce considérée, la gamme d'altitude des profils retrouvés varie : l'absorption de l'ozone a été mesurée de 10.625 km à 32 km et celle du dioxyde d'azote de 18.625 km à 32 km. Dans cette étude, l'altitude sera plutôt exprimée en terme de température potentielle, les transports de masse d'air se faisant sur des trajectoires isentropes c'est à dire sur des trajectoires à température potentielle constante. La figure

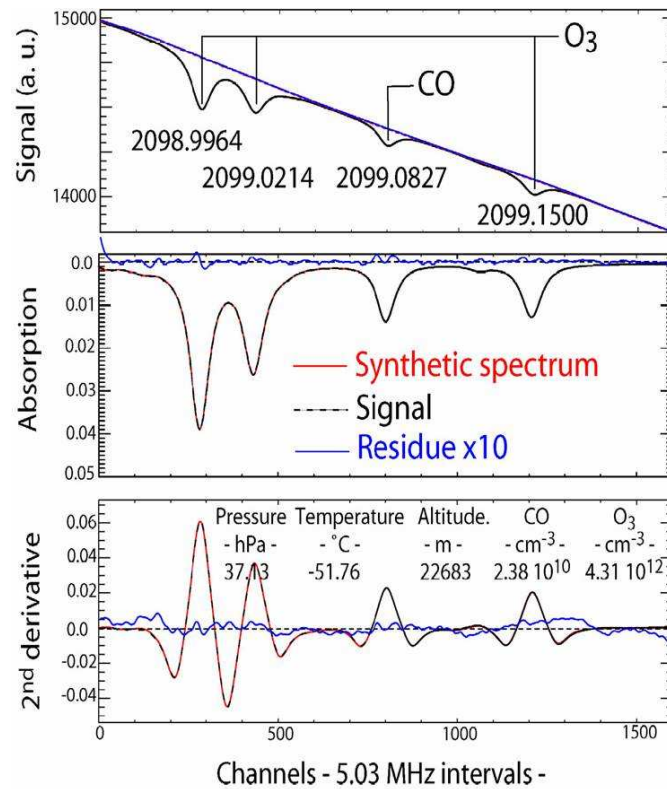


FIG. 4.52 – Processus de restitution de la concentration en O<sub>3</sub> et en CO. En haut : signal d'absorption (en noir) et signal sans absorption reconstruit (bleu). Au milieu : spectre d'absorption synthétique (en rouge), expérimental (en pointillé noir) et le résidu (en bleu). En bas : dérivées secondes des spectres d'absorption synthétique (en rouge) et expérimental (en pointillé noir) et résidu (en bleu), données géophysiques et concentrations retrouvées. D'après Moreau et al. [2005].

4.53 présente les variations de la température potentielle avec l'altitude pour le vol de SPIRALE.

La principale spécificité de ce vol de SPIRALE est sa position par rapport au vortex polaire. En effet, SPIRALE a cotoyé la frontière du vortex, étant tantôt à l'extérieur, à l'intérieur ou à la frontière au cours de son ascension. La figure 4.54 montre les cartes de vorticité potentielle à différentes températures potentielles calculées à l'aide du modèle MIMOSA (Modélisation Isentrope du transport Mésos-échelle de l'Ozone Stratosphérique par Advection) [Hauchecorne et al., 2002]. A 417, 483 et 500 K la nacelle est hors du vortex, à 547 et 573 K, elle est rentrée dans un filament de vortex à 670 et 723 K, elle se situe entre le filament et le vortex lui-même et au-delà, elle est à l'intérieur du vortex. Ces positions par rapport au vortex polaire rendent la comparaison avec toutes autres mesures difficiles. En effet, la vorticité potentielle devient ici une grandeur devant intervenir comme critère de coïncidence entre 2 mesures au même titre que la distance et la durée les séparant. La comparaison nécessite donc de mettre en place 3 critères pour définir une coïncidence : les critères d'iso-PV, temporel et spatial. Comme le montre le tableau 4.5, aucun événement SAGE III ne se trouve dans la région de Kiruna le jour du vol de SPIRALE permettant une comparaison directe.

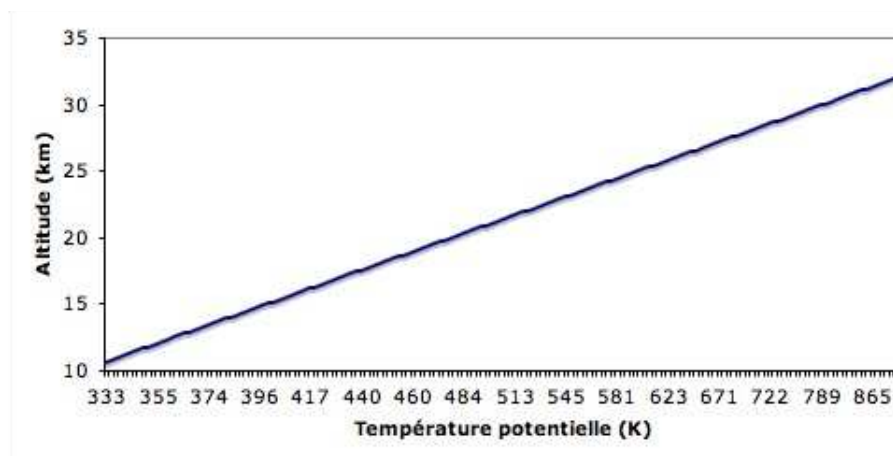


FIG. 4.53 – Température potentielle en fonction de l’altitude pendant l’ascension de SPIRALE.

Orbite	Heure (TU)	Latitude	Longitude
556620	16 : 14	69.80	-71.78
556720	18 : 00	69.82	-97.97
556820	19 : 45	69.84	-124.3
556920	21 : 30	69.86	-150.46
557020	23 : 16	69.88	-176.78

TAB. 4.5 – Événements SAGE III le 21 janvier 2003 entre 16h et 23h30 dans l’hémisphère nord. Les longitudes négatives correspondent à l’ouest de Greenwich. Les latitudes et longitudes indiquées correspondent à la position du point subtangent à 20 km.

### 4.6.3 Comparaisons

La recherche de coïncidences a donc été effectuée à chaque niveau, le long de trajectoires isentropes avant et arrière calculées à l’aide du logiciel HYSPLIT<sup>1</sup> (Hybrid Single-Particle Lagrangian Integrated Trajectory) à partir des positions de SPIRALE. Les trajectoires sont calculées sur neuf journées avec un pas d’une heure. Les évolutions de l’ozone et du dioxyde d’azote le long de ces trajectoires ne sont pas semblables. En effet, l’ozone peut être considéré comme un traceur sur quelques journées alors que le dioxyde d’azote est une espèce ayant une variation cyclique diurne très prononcée. La figure 4.55 présente de façon schématique le cycle de variation du rapport de mélange du dioxyde d’azote dans la stratosphère. La teneur en dioxyde d’azote est maximale à la tombée de la nuit puis diminue au cours de celle-ci. Au lever de soleil, la concentration en dioxyde d’azote décroît très rapidement (principalement du fait de la photolyse du NO<sub>2</sub>). Au cours de la journée, la concentration en NO<sub>2</sub> reste basse mais augmente légèrement. Au coucher du soleil, la concentration en NO<sub>2</sub> augmente rapidement (réaction de l’ozone avec NO).

Le vol de SPIRALE est effectué de nuit quand le rapport de mélange en NO<sub>2</sub> est maximal et les mesures d’occultation de SAGE III sont effectuées aux crépuscules. Par conséquent, il sera nécessaire, après avoir trouvé les événements comparables, de corriger les profils de NO<sub>2</sub> de SAGE III.

<sup>1</sup><http://www.arl.noaa.gov/ready.html>



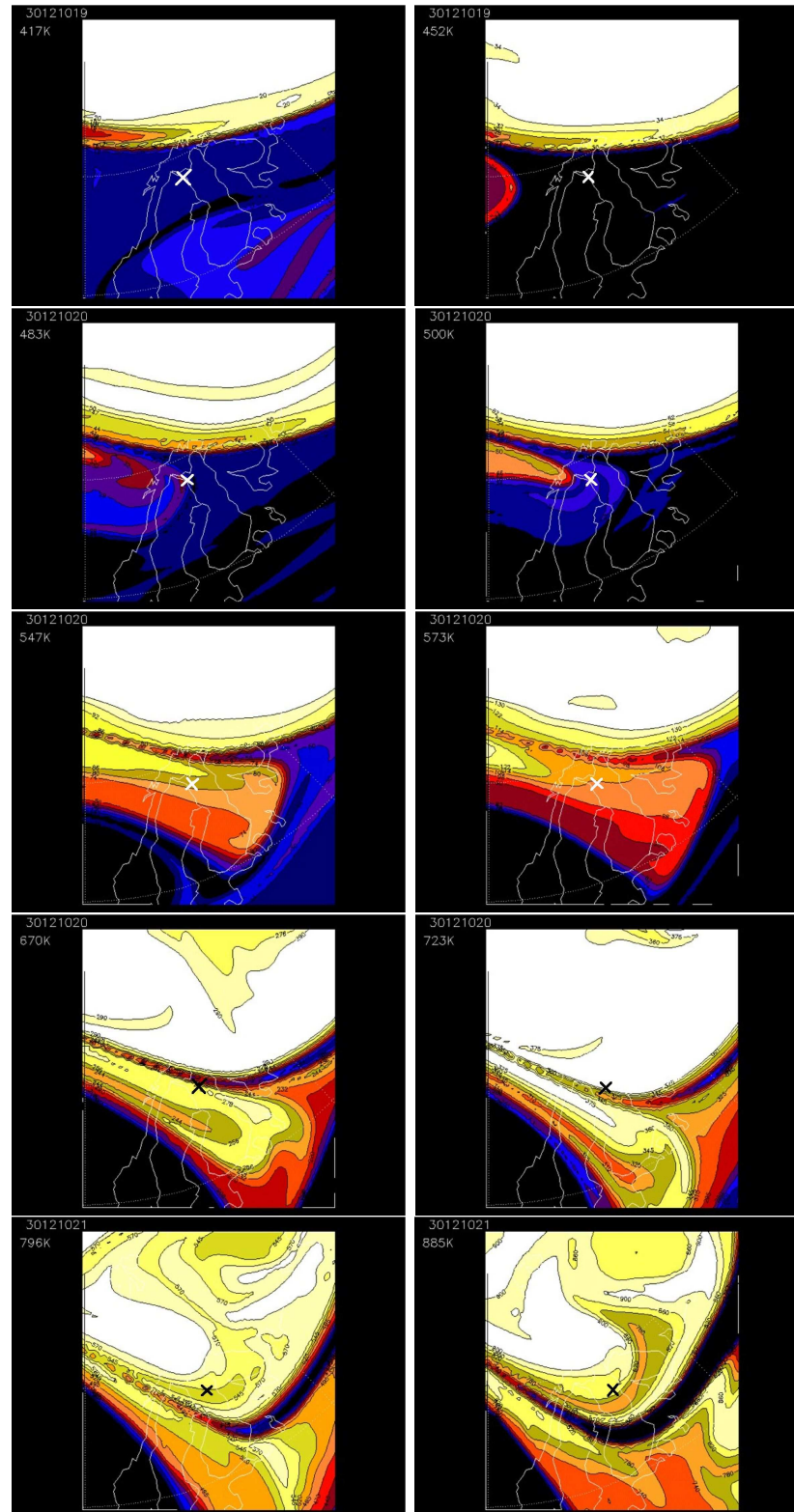


FIG. 4.54 – Cartes de vorticité potentielle pour différentes altitudes de SPIRALE de 417 à 885 K (16 à 32 km). La position de SPIRALE est repérée par une croix blanche ou noire. Cartes fournies par F. Coquelet, LPCE Orléans.

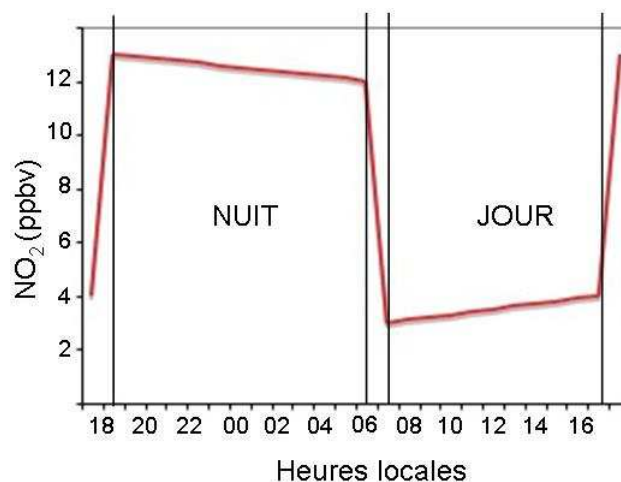


FIG. 4.55 – Cycle diurne du dioxyde d'azote.

**Recherche de coïncidences :**

- Le premier critère utilisé est spatial : on cherche pour chaque point de la trajectoire si une mesure SAGE III a eu lieu à moins de 600 km de ce point.
- Le deuxième critère utilisé est l'écart temporel entre la mesure SAGE III et l'heure le long des trajectoires. Du fait des variations très rapides de  $\text{NO}_2$  au lever ou au coucher de soleil, un écart de moins d'une heure est accepté. Une première sélection est ainsi effectuée à chaque niveau.
- La dernière sélection effectuée permet de s'assurer que la masse d'air traversée par la trajectoire est bien la même que celle sondée par SAGE III. Le critère de vorticité potentielle est appliqué sur la base de carte de vorticité potentielle fournie par F. Coquelet (LPCE) et calculée à l'aide de MIMOSA.

A certains niveaux, aucune coïncidence n'a pu être trouvée du fait de la très grande proximité des trajectoires simulées avec le vortex polaire (critère PV non respecté). L'utilisation de trajectoires avant s'est avérée vaine, aucune coïncidence avec SAGE III ne fut trouvée. Le tableau 4.6 recense les coïncidences trouvées le long des rétrotrajectoires.

Température potentielle (K)	Orbite	Date	Distance de SAGE III à la trajectoire
417	556320	21-01-2003	280 km
452	556320	21-01-2003	417 km
483	556320	21-01-2003	550 km
500	552620	18-01-2003	455 km
547	556420	21-01-2003	440 km
573	556420	21-01-2003	463 km
670	556420	21-01-2003	588 km
723	556420	21-01-2003	499 km
796	552220	18-01-2003	409 km
885	556320	21-01-2003	490 km

TAB. 4.6 – Coïncidences iso-PV, temporelle et spatiale entre SAGE III et les rétrotrajectoires issues du vol de SPIRALE.

Afin de tenir compte de la différence entre les résolutions verticales des mesures SPIRALE (quelques mètres) et SAGE III (0.5 km), le profil SPIRALE a été lissé à l'aide d'une fonction triangulaire de largeur 1 km à la base.

La figure 4.56 présente les profils de rapport de mélange de SAGE III - LOA et SPIRALE pour l'ozone ainsi que les profils des différences relatives entre ces deux profils. Les différences relatives calculées sont comprises entre -10 et 10% pour six niveaux étudiés sur dix. Aux autres niveaux, les différences relatives restent tout de même inférieures à 30% en valeurs absolues. Généralement, la concentration en ozone issue de SAGE III - LOA est supérieure à celle issue de SPIRALE sauf à 452, 500 et 796 K. Pour ces deux derniers niveaux, les coïncidences SAGE III trouvées ont eu lieu trois jours avant la mesure SPIRALE rendant la comparaison plus délicate.

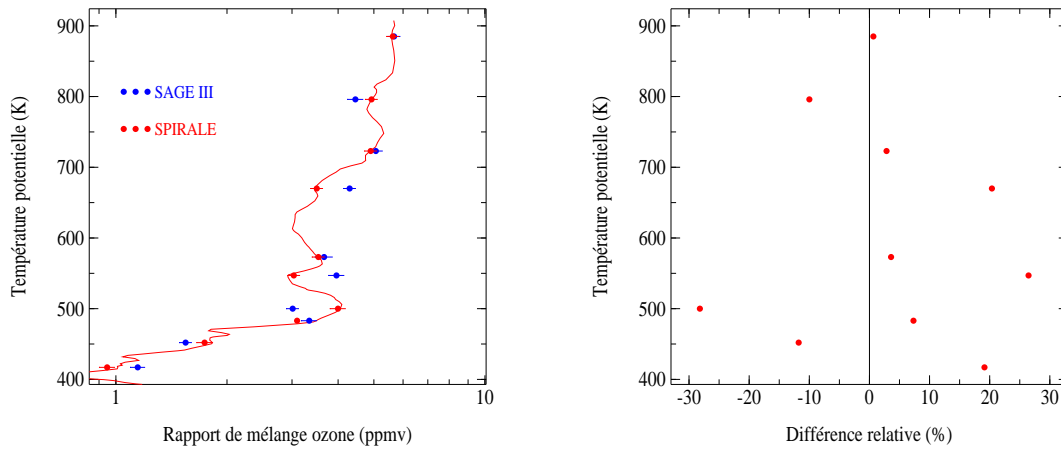


FIG. 4.56 – Profils verticaux des rapports de mélange d'ozone mesurés par SPIRALE et par les événements SAGE III -LOA en coïncidence avec les rétrotrajectoires (à gauche). Le profil rouge correspond au profil SPIRALE non convolué, les points rouge aux mesures SPIRALE convolué et les points bleus aux mesures SAGE III - LOA. Les barres d'incertitudes sont reportées en trait plein. Le profil des différences relatives associées est dans le panneau de droite. Elles sont calculées comme la différence (SAGE III - SPIRALE) sur la moyenne des deux mesures.

Pour la plupart des niveaux, la coïncidence trouvée a lieu au matin du vol de SPIRALE. La quantité de dioxyde d'azote mesurée par SAGE III pour ces coïncidences et à ces niveaux n'est donc pas comparable directement à celle mesurée par SPIRALE. Pour tenir compte de la différence temporelle entre les deux mesures, un coefficient issu du modèle lagrangien MIPLASMO (Microphysical and Photochemical Lagrangian Stratospheric Model of Ozone) [Rivière, 2001] est appliqué à la valeur mesurée par SAGE III. Le rapport de mélange  $r_{NO_2}^{co}$  de SAGE III corrigé se calcule comme suit :

$$r_{NO_2}^{co} = r_{NO_2}^{mes} * \frac{NO_2^{spi}}{NO_2^{sr}} \quad (4.29)$$

où l'exposant 'sr' désigne la valeur calculée par MIPLASMO au lever du soleil le jour de la mesure SPIRALE et l'exposant 'spi' vaut pour la valeur calculée au moment du vol de SPIRALE. A 500 et 796 K, les événements SAGE III trouvés ont eu lieu au lever

du soleil, 3 jours avant le vol de SPIRALE. Les mêmes coefficients (ceux modélisant la variation de dioxyde d'azote entre le moment du vol et le lever de soleil du même jour) ont été appliqués. Les résultats obtenus sont présentés sur la figure 4.57. Les différences relatives entre les profils SPIRALE et SAGE III - LOA corrigés s'étendent de -60 à -30% (SAGE III - LOA inférieur à SPIRALE) et de 30 à 60% (SAGE III - LOA supérieur à SPIRALE) pour d'autres niveaux. La correction diurne améliore les comparaisons sauf à 500 K et à 723 K pour des raisons inexpliquées. Ces désaccords sont consistants avec l'une des conclusions de l'article de Berthet et al. [2007] : les désaccords entre les profils de  $\text{NO}_2$  issus de mesures à distance et ceux issus de mesures in-situ sont attribués à l'hypothèse d'homogénéité sphérique utilisée dans les algorithmes d'inversion des mesures d'occultation. En effet, dans le cas de situation dynamique complexe (abords du vortex), le long trajet optique traverse des zones hors vortex (riche en  $\text{NO}_2$ ) et des zones à l'intérieur du vortex (pauvre en  $\text{NO}_2$ ) générant des structures dans le profil de  $\text{NO}_2$  ne reflétant pas la réalité.

Les désaccords persistants entre SPIRALE et les mesures SAGE III corrigées soulignent le fait que la méthode d'occultation est mal adaptée à la mesure d'espèces très réactives dans le cas de situations dynamiques complexes [Berthet et al., 2007].

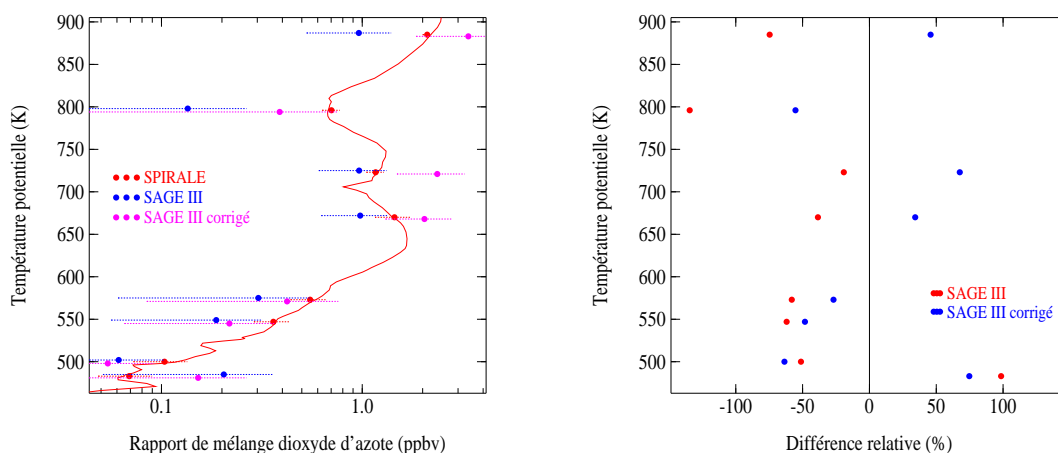


FIG. 4.57 – Profils verticaux des rapports de mélange de dioxyde d'azote mesurés par SPIRALE (en rouge) et par les événements SAGE III - LOA (en bleu) en coïncidence avec les rétrotrajectoires (à gauche). Le profil en trait continu rouge correspond au profil SPIRALE non convolué, les points rouges aux mesures SPIRALE convoluées, les points bleus aux mesures SAGE III - LOA non corrigées et les points roses aux profils SAGE III - LOA corrigés. Les barres d'incertitude sont reportées en traits pointillés. Les profils des différences relatives associées sont représentés à droite. Elles sont calculées comme la différence (SAGE III - SPIRALE) sur la moyenne des deux. En rouge, avec SAGE III non corrigé et en bleu avec la correction diurne.

## 4.7 Conclusions

Ce chapitre a détaillé les différentes étapes de l'algorithme d'inversion des transmissions spectrales de SAGE III. Les produits obtenus ainsi que leurs incertitudes ont également été présentés. A des fins de validation, ces produits ont été confrontés aux produits SAGE III officiels et à ceux issus de l'algorithme du SPbSU. Des comparaisons avec des mesures coïncidentes des satellites SAGE II et POAM III ont également été présentés. Enfin, les profils verticaux de l'instrument sous ballon SPIRALE ont été comparés à des mesures corrélatives de SAGE III.

Nous résumons dans le tableau 4.7 les résultats des différentes comparaisons effectuées. Dans la stratosphère, les concentrations en ozone déduites des mesures de SAGE

	<b>SAGE III (LaRC)</b>	<b>SAGE III (SPbSU)</b>	<b>POAM III</b>	<b>SAGE II</b>	<b>SPIRALE</b>
O <sub>3</sub>	+++	+++	+++	+++	++
NO <sub>2</sub>	++	+	+++	++	--
384	++	ND	ND	--	ND
448	++	ND	+	-	ND
520	++	ND	ND	+	ND
600	++	ND	++	ND	ND
675	++	ND	ND	ND	ND
750	++	ND	ND	ND	ND
869	++	ND	ND	ND	ND
1020	++	ND	-	-	ND
1545	++	ND	ND	ND	ND

TAB. 4.7 – Résumé des comparaisons effectuées entre les produits SAGE III (LOA) et les produits issus d'autres algorithmes et d'autres instruments. Le nombre de symbole + traduit la qualité de l'accord entre les 2 produits et le nombre de - l'importance du désaccord. ND signifie que le produit concerné n'existe pas ou n'est pas disponible.

III par notre algorithme sont en très bon accord avec celles déduites des algorithmes du LaRC et du SPbSU. En comparant ces produits issus d'une même mesure mais d'algorithme d'inversion différents, nous inter-validons ces trois produits. Cependant, nous devons recourir aux produits d'autres instruments ("pré-validés") afin de valider la mesure de SAGE III. Nous avons ainsi comparé notre produit à ceux des instruments SAGE II, POAM III et SPIRALE. Un très bon accord est également obtenu (dans une moindre mesure avec SPIRALE). Dans la stratosphère, nous pouvons donc avoir confiance dans les mesures d'ozone issues de ces instruments. Il nous reste toutefois à améliorer les concentrations en ozone dans la mésosphère par l'utilisation des canaux UV de SAGE III.

La télédétection par occultation solaire du dioxyde d'azote est, quant à elle, plus délicate. En effet, une mesure d'occultation est effectuée au lever ou au coucher de soleil, au moment où les concentrations en NO<sub>2</sub> varient le plus fortement. L'accord obtenu entre notre produit et ceux issus des deux autres algorithmes d'inversion de SAGE III est globalement bon. Les comparaisons effectuées avec les concentrations en NO<sub>2</sub> déduites des instruments SAGE II et POAM III fournissent de bons résultats : globalement, de bons accords sont obtenus. Notre produit NO<sub>2</sub> est par conséquent tout à fait exploitable à des fins scienti-

fiques. Toutefois, les résultats de la comparaison avec SPIRALE nuancent cette conclusion. En effet, les forts désaccords trouvés entre notre produit et celui déduit des mesures in situ de SPIRALE montrent que les mesures de cette espèce par occultation solaire (ou, plus généralement les mesures au limbe) sont à considérer avec précaution dans le cas de situations dynamiques complexes telle la proximité du vortex polaire. Il ressort donc de ces études que notre produit  $\text{NO}_2$  est fiable en dehors de ces situations. Il est prévu, afin d'améliorer encore notre produit  $\text{NO}_2$  d'intégrer à notre algorithme d'inversion un modèle permettant de prendre en compte les variations de l'angle zénithal solaire le long de la ligne de visée. De plus, dans la prochaine version de notre algorithme, les sections efficaces d'absorption utilisées ne seront plus fixes mais variables selon la température : nous utiliserons les quatre jeux de sections efficaces dont nous disposons (voir paragraphe 4.1.2.1).

Pour les aérosols, l'accord entre les produits du LOA et ceux du LaRC est bon, fournissant ainsi une bonne inter-validation de ces produits. Les comparaisons avec les coefficients d'extinction des aérosols des mesures POAM III en coïncidence ont permis de valider les coefficients d'extinction de SAGE III (LOA) à 448.5 nm et 600 nm. Par contre, le coefficient d'extinction à 1020 nm n'a pu être validé par POAM III. Sur une grande partie des altitudes observées, le coefficient d'extinction SAGE III à 1020 nm sous-estime en moyenne celui de POAM III. Les comparaisons aérosols avec SAGE II confirment ce désaccord observé à 1020 nm : le coefficient d'extinction SAGE III (LOA) à 1020 nm sous-estime celui de SAGE II. A l'opposé, les profils d'extinction SAGE III surestiment les profils SAGE II à 385 et 448 nm. Il est alors difficile de conclure quant à la qualité des produits aérosols de SAGE III dans les canaux à 385 nm et à 1020 nm qu'ils soient déduits de l'algorithme officiel ou de notre algorithme. Nous pouvons tout de même affirmer que notre algorithme fournit des produits aérosols de relativement bonne qualité à 448, 520 et 600 nm, utilisables pour exploitations scientifiques.



## Chapitre 5

# Les aérosols stratosphériques issus de feux de forêt

Ce chapitre résume tout le travail effectué dans l'attente de pouvoir appliquer notre algorithme d'inversion aux transmissions de SAGE III. En effet, ces transmissions, points de départ de l'algorithme, n'ont été mises à notre disposition que tardivement. Ainsi, tout ce travail a été effectué avec les produits officiels de SAGE III (version 3). L'initiative de cette étude revient à la presse ! En effet, en septembre 2003 (date de mon entrée au LOA pour mon stage de DEA), la presse internationale mettait en exergue l'intensité des incendies de forêt de l'ouest du Canada. La province de Colombie Britannique fut plus particulièrement touchée avec 275 000 hectares de forêts brûlés. L'été 2003 est l'été au cours duquel le plus grand nombre d'incendies de fortes intensités fut recensé dans cette région du Canada au cours des 15 dernières années [Filmon, 2004]. Dans une moindre mesure, la province d'Alberta fut également fortement touchée.

Plusieurs profils SAGE III de coefficients d'extinction des aérosols en août 2003 dans ces régions ont révélé la présence de structures inhabituelles dans la basse stratosphère : des couches d'aérosols (de quelques kilomètres) de forts coefficients d'extinction ont été mises en évidence. Une relation de cause à effet entre les feux de forêt et ces structures a alors été supposée. Un phénomène de pyro-convection pourrait être à l'origine de ces couches d'aérosols dans la basse stratosphère. Les images MODIS (MODerate resolution Imaging Spectroradiometer) ont montré que ces structures pouvaient être le fait des feux de forêt. L'indice aérosol TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) correspondant semble également l'affirmer. A l'aide des mesures spectrales de SAGE III, nous avons alors déterminé les propriétés microphysiques de ces aérosols. Après un préambule présentant la géographie des lieux considérées, la situation météorologique et les incendies de l'été 2003, nous présenterons les observations satellitaires correspondantes ainsi que la restitution des propriétés microphysiques des aérosols détectés par SAGE III.

Ce chapitre a fait l'objet d'une publication dans un compte rendu de congrès [Tetard et al., 2005].



## 5.1 Géographie, conditions météorologiques et incendies de l'ouest canadien en août 2003

### 5.1.1 Géographie

Les provinces canadiennes qui nous intéressent ici sont celles de Colombie Britannique et d'Alberta (voir carte 5.1). Elles sont comprises approximativement entre les latitudes 50 et 60° nord et entre les longitudes 110 et 130° ouest. L'ouest du Canada est une région montagneuse. Les montagnes rocheuses constituent la frontière sud entre les provinces d'Alberta et de Colombie Britannique. Elles culminent à près de 4000 m. Les montagnes des chaînes côtières, dans l'ouest de la Colombie Britannique s'élèvent quant à elles jusqu'à plus de 4000 m.



FIG. 5.1 – Carte des provinces du Canada <sup>1</sup>.

Une grande partie de ces deux provinces est constituée de forêts. Il s'agit essentiellement de forêts de résineux en Colombie Britannique alors que la forêt d'Alberta peut être composée de résineux et de feuillus. Il est à noter que les résineux constituent un meilleur combustible que les feuillus et que les incendies de résineux sont plus intenses. Ces forêts sont présentes dans les vallées ainsi que sur les contreforts des montagnes.

<sup>1</sup><http://atlas.nrcan.gc.ca/site/index.html>

### 5.1.2 Conditions météorologiques de l'été 2003 au Canada

Les cartes météorologiques issues des archives du service météorologique du Canada (voir cartes 5.2) montrent que les provinces de Colombie Britannique et d'Alberta eurent un été 2003 plus sec et plus chaud que la normale. Les précipitations (carte 5.2 à gauche) au sud de la Colombie Britannique et de l'Alberta furent inférieures de près de 60% à la normale. Les températures (carte 5.2 à droite) furent supérieures de 1.5 à 3°C par rapport à la normale dans le sud de ces régions. Cette situation perdura sur la quasi-intégralité de l'été 2003 du fait d'un anticyclone ancré près de la côte ouest du Canada. Pour illustrer, la ville de Kelowna (sud de la Colombie Britannique) connut en 2003 son été le plus sec depuis 1899 avec 44 journées consécutives sans pluie!

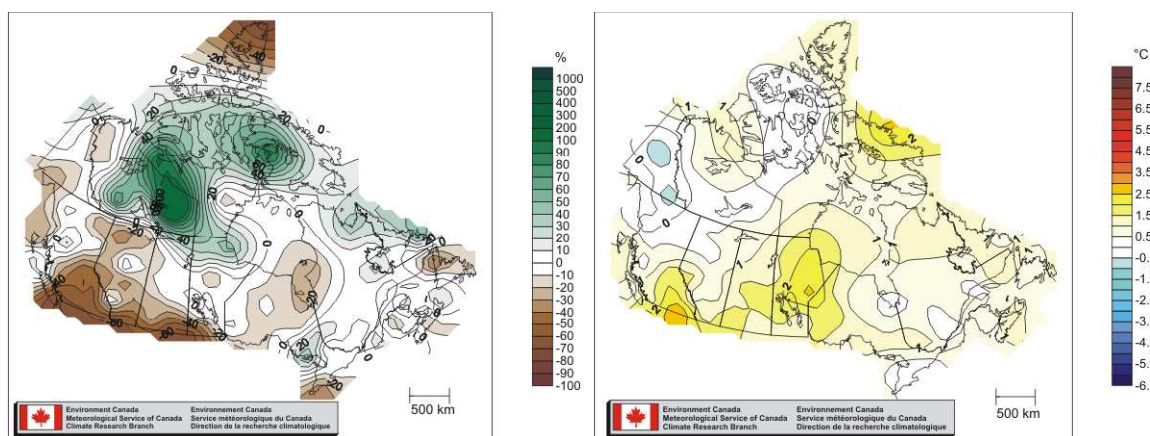


FIG. 5.2 – Cartes d'anomalies de précipitations (à gauche) et de températures (à droite) pour les mois de juin, juillet et août 2003. D'après les services météorologiques du Canada.

### 5.1.3 Les incendies de forêt

Toutes les conditions requises pour d'intenses feux de forêt furent alors réunies dans ces deux provinces canadiennes. Cependant, la saison des feux fut tout de même d'une ampleur inattendue de par l'étendue des incendies et de par leurs intensités. Des 2 régions, la Colombie Britannique fut la plus touchée. Près de 2500 feux de forêt furent recensés en Colombie Britannique (275 000 ha de forêts incendiées) et 1200 en Alberta (75 000 ha). La carte 5.3 montre la répartition spatiale et l'étendue des feux de forêt en Colombie Britannique sur la période de juin à août 2003. La majorité des feux de forêt eut lieu dans le sud de la Colombie Britannique, région alors très sèche. C'est également au sud que les feux de forêt s'étendant sur plus de 100 ha eurent lieu. L'intensité de ces feux de forêt est renforcée non seulement par la nature du combustible (en majorité des résineux) mais aussi par la pente des montagnes (voir photographie 5.3).

Notons qu'évidemment ces incendies ne se sont pas arrêtés à la frontière américano-canadienne. En effet, l'état du Washington connut également beaucoup d'incendies de forêt en août 2003.

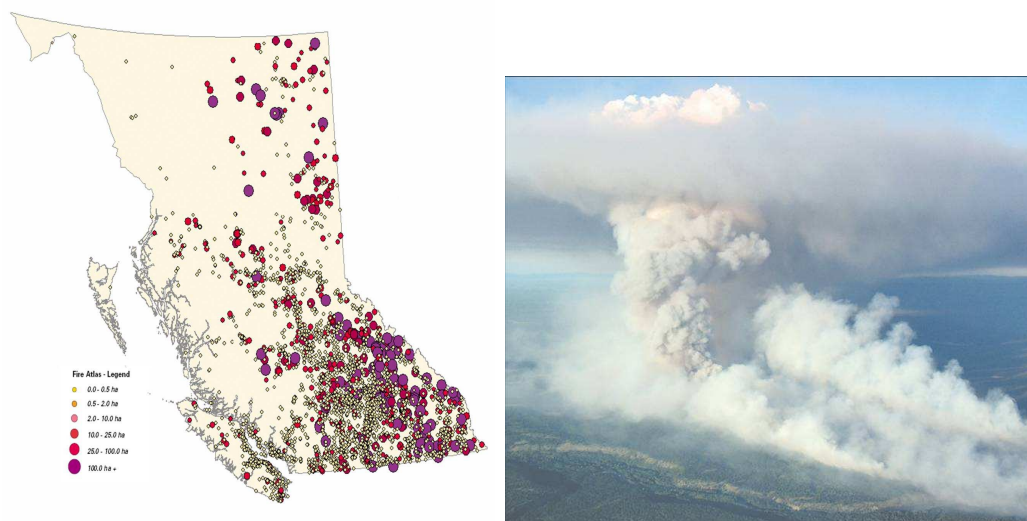


FIG. 5.3 – A gauche, cartes des feux de forêts en Colombie Britannique pendant l'été 2003. Chaque point coloré correspond à un feu de forêt. A droite, photographie d'un de ces intenses feux de forêts. D'après Filmon [2004].

## 5.2 Observations satellitaires de feux de forêt

L'intensité de ces feux de forêts (voir la photographie de la figure 5.3) fut telle que d'impressionnants panaches de fumées et de poussières furent émis jusqu'à plusieurs kilomètres d'altitude dans la troposphère. Par conséquent, nous nous sommes demandés si les instruments satellitaires couvrant cette zone distinguaient une signature particulière due à ces panaches de fumée. Cette section résume l'ensemble des observations satellitaires utilisées dans cette étude.

### 5.2.1 L'instrument MODIS

MODIS est un radiomètre imageur développé par la NASA [Salomonson et al., 1989] visant au nadir. Deux versions de cet instrument sont à bord de 2 plateformes satellitaires nommées EOS-Terra (lancée en décembre 1999) et EOS-Aqua (lancée en avril 2002). Ils gravitent sur la même orbite (héliosynchrone, 700 km) à quelques heures de décalage. La large fauchée de MODIS (plus de 2000 km) permet de couvrir l'intégralité du globe en une ou deux journées. MODIS possède 36 canaux spectraux allant de  $0.405 \mu\text{m}$  à  $14.385 \mu\text{m}$ .

Nous utiliserons ici les images résultant de la combinaison des canaux à 670 nm, 876 nm et 2155 nm. Chaque point rouge représente une anomalie de température détectée par les canaux infrarouges de MODIS. Il peut alors s'agir de feux ou d'éruptions volcaniques. Les panaches de fumée sont clairement identifiables et distincts des nuages. Ces images sont disponibles publiquement sur le site internet de MODIS<sup>2</sup>.

Nous présenterons ici, à titre d'exemple, deux cartes MODIS (figures 5.4). La carte de gauche correspond aux feux de forêts de Colombie Britannique du 1<sup>er</sup> août 2003 et celle de droite à ceux du 3 août 2003.

<sup>2</sup><http://rapidfire.sci.gsfc.nasa.gov/>



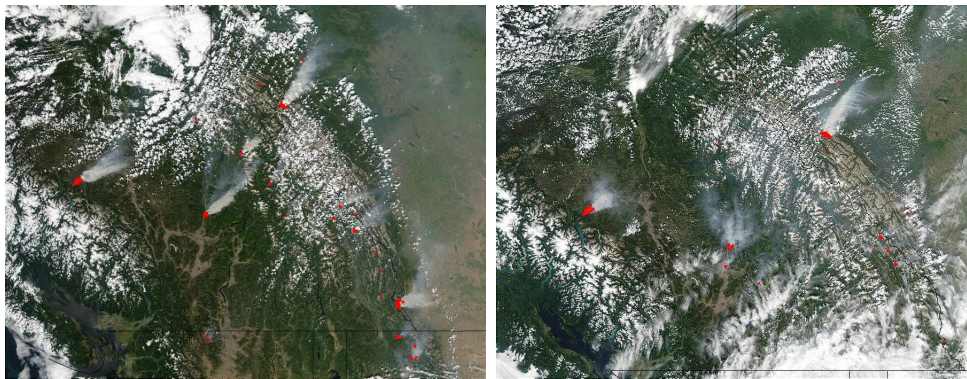


FIG. 5.4 – Feux de forêt vus par MODIS. A gauche, la carte du 1<sup>er</sup> août 2003 de 48 à 55°nord et de 112 à 126°ouest. A droite, la carte du 3 août 2003, de 49 à 55°nord et de 113 à 127°ouest.

A chaque point rouge correspond une anomalie de température. On remarque donc que l'instrument MODIS détecte les feux de forêt. Seulement, nous ne pouvons en tirer que des conclusions qualitatives. Rien ne nous renseigne sur l'altitude ou la composition des panaches de fumée, nous pouvons simplement conclure que ces feux de forêt émettent comme on s'y attendait d'importants panaches de fumée.

### 5.2.2 L'instrument TOMS

TOMS a été lancé à bord de différentes plateformes satellitaires : Nimbus 7 de 1978 à 1993, Adeos de 1996 à 1997 et Earth Probe de 1996 à 2005) [McPeters et al., 1998]. TOMS mesure la luminance diffusée par l'atmosphère dans six bandes spectrales entre 308.6 et 360 nm. Il est principalement destiné à la détermination de la colonne totale d'ozone. L'équipe scientifique de TOMS fournit également un produit aérosol appelé l'indice aérosol (AI). Il s'agit en fait d'une grandeur représentant la différence entre la luminance mesurée (c'est à dire la luminance de l'atmosphère, incluant notamment la diffusion moléculaire et l'extinction des aérosols) et la luminance simulée d'une atmosphère purement moléculaire :

$$AI = 100 * \log \left( \frac{I_{360}^{mes}}{I_{360}^{cal}} \right) \quad (5.1)$$

On qualifie l'indice aérosol d'élevé quand il approche ou excède la valeur 8. Trois raisons peuvent expliquer de fortes valeurs de l'indice aérosol [Hsu et al., 1999] :

- une forte épaisseur optique des aérosols,
- un faible albédo de diffusion simple (aérosols fortement absorbants),
- une altitude élevée de la couche d'aérosol.

De fortes valeurs de l'indice aérosol (entre 25 et 32) ont été précédemment relevées par Fromm et al. [2005, 2006] lors d'événements de pyro-convection. Dans ces deux cas, l'altitude élevée du panache de fumée (de l'ordre de 12 à 16 km) est la cause de ces forts indices aérosols.

Même si les indices aérosols associés aux feux de forêt de l'ouest canadien en 2003 n'atteignent pas de telles valeurs, ils sont tout de même importants : le 2 août 2003, l'indice aérosol atteint la valeur de 6 et le 3 août, il atteint 8.5 (voir cartes 5.5). Cependant, rien ne nous permet de conclure sur la raison de ces forts indices aérosols, nous pouvons là encore juste conclure sur l'importance des émissions d'aérosols liées à ces feux de forêts.

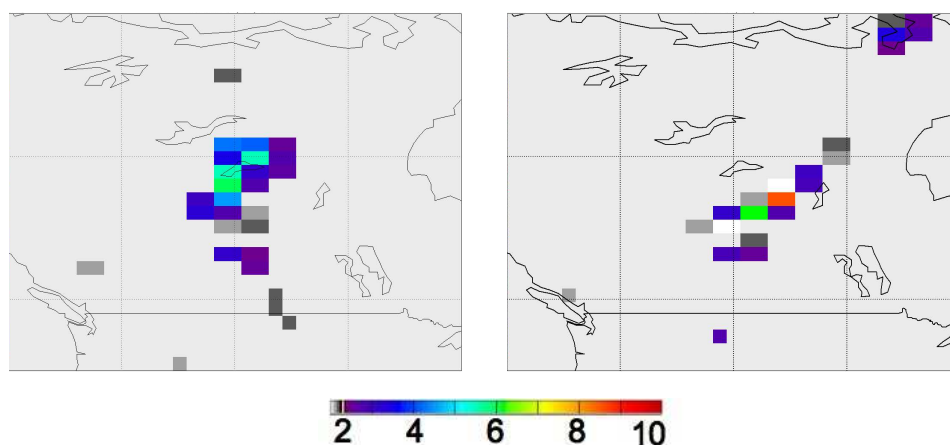


FIG. 5.5 – Indice aérosol (TOMS) le 2 août 2003 (à gauche) et le 3 août 2003 (à droite).

### 5.2.3 L'instrument SAGE III

La forte intensité des feux de forêts de l'ouest canadien en août 2003 est avérée. Nous nous sommes alors demandés s'ils étaient suffisamment intenses pour atteindre la haute troposphère voire la basse stratosphère. L'analyse de plusieurs profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols a montré, pour tous ces événements une forte augmentation dans la basse stratosphère. Ces événements sont recensés dans le tableau 5.1.

n° de l'événement	n° d'orbite	date	heure (TU)	latitude nord	longitude ouest
1	00819820	2 août 2003	4h	51.7	121.4
2	00821120	3 août 2003	2h30	52	103.8
3	00822520	4 août 2003	3h	52.3	112.4
4	00823920	5 août 2003	3h45	52.7	121.1
5	00826620	7 août 2003	3h	53.4	112.1
6	00828020	8 août 2003	3h45	53.7	120.8
7	00830720	10 août 2003	3h	54.5	111.8
8	00832120	11 août 2003	3h45	54.9	120.5
9	00834820	13 août 2003	3h	55.7	111.5
10	00843020	19 août 2003	3h	58.4	111.3

TAB. 5.1 – Liste des événements SAGE III dans l'ouest canadien en août 2003 présentant une anomalie d'extinction aérosols dans la basse stratosphère. Le numéro affecté à chaque événement sera repris dans la suite de ce chapitre.

La figure 5.6 montre ces différents profils de coefficient d'extinction des aérosols. On distingue aisément pour ces 10 événements l'augmentation du coefficient d'extinction aux longueurs d'onde de SAGE III dans la basse stratosphère (quelques kilomètres au-dessus de la tropopause thermique). Ces augmentations pourraient être imputées à d'éventuelles éruptions volcaniques de fortes intensités mais aucune n'eut lieu à cette période de l'année, ni les mois précédents. Cette augmentation pourrait également être le fait de nuages de hautes altitudes. Ainsi, nous avons examiné pour chacun des événements SAGE III

le produit nuage fourni par l'équipe du LaRC. Ce produit consiste en deux 'flags', un indiquant la présence (ou l'absence) de nuages et l'autre représente l'incertitude sur ce produit. La présence de nuages correspond aux flags 3 et 4, l'absence correspond aux flags 1 et 2 (le flag 0 montre que certaines données manquent pour pouvoir déterminer correctement le flag). Les flags incertitudes 2, 3 et 4 indiquent que le flag présence associé est douteux (pour diverses raisons, voir McCormick [2002]). Le flag incertitude 1 indique que le flag présence correspondant est très fiable et le flag incertitude 0 montre également que certaines données manquent pour pouvoir déterminer correctement le flag présence. La figure 5.7 montre les profils verticaux de ces flags pour les 10 événements SAGE III étudiés. Il apparaît que pour tous les événements, hormis les n° 3 et 7, l'absence de nuages est constatée (flag présence 1) avec une bonne certitude (flag incertitude 1) aux altitudes où les augmentations du coefficient d'extinction des aérosols sont observées. Pour les événements n° 3 et 7, l'algorithme nuage du LaRC conclue sur l'absence de nuages mais avec une incertitude élevée.

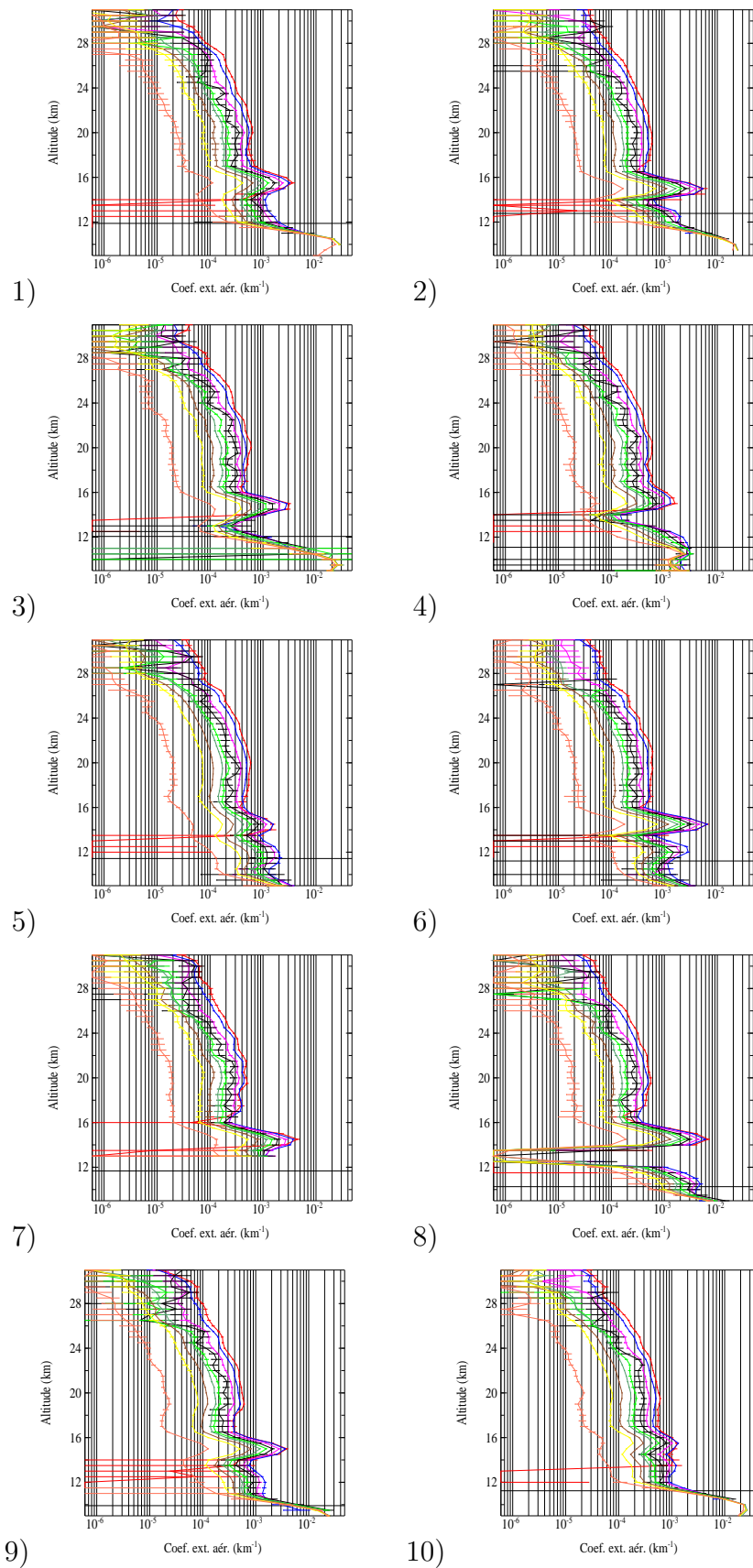


FIG. 5.6 – Profils verticaux des coefficients d'extinction des aérosols issus des mesures de SAGE III dans l'ouest du Canada durant le mois d'août 2003. La ligne horizontale noire correspond à l'altitude de la tropopause.

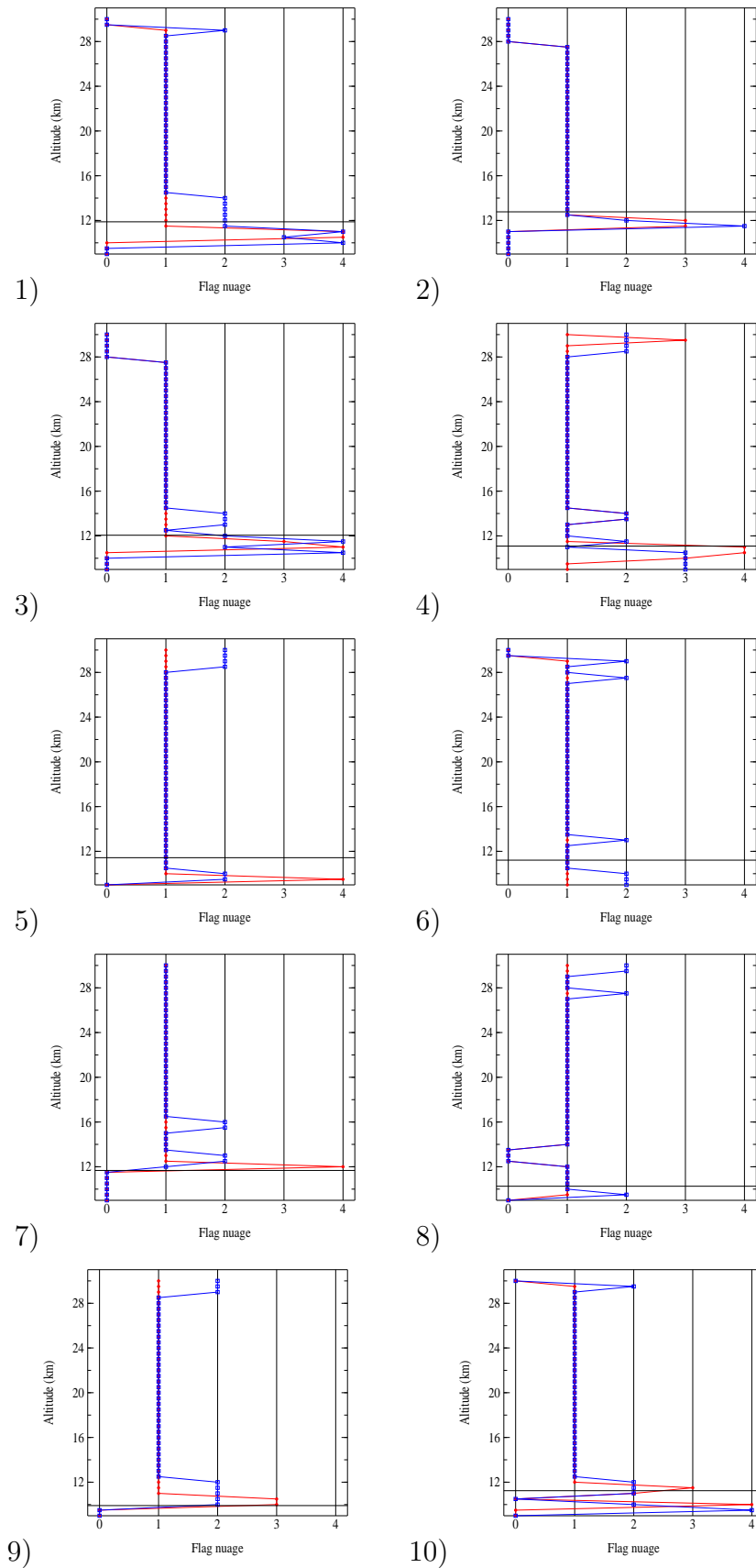


FIG. 5.7 – Profils verticaux du flag 'présence de nuage' (en rouge) et du flag 'incertitude' associé (en bleu) issus des mesures de SAGE III dans l'ouest du Canada durant le mois d'août 2003. La ligne horizontale noire correspond à l'altitude de la tropopause.



### 5.2.4 L'instrument POLDER 2

L'instrument POLDER 2 (POLarization and Directionality of the Earth's Reflectances) est un radiomètre imageur grand champ développé par le CNES [Deschamps et al., 1994]. Il a été mis en orbite à bord de la plateforme ADEOS-2 en décembre 2002 et a fonctionné jusqu'en octobre 2003. Il fournit les caractéristiques spectrales, directionnelles et polarisées du rayonnement solaire réfléchi par l'atmosphère terrestre. POLDER 2 possède plusieurs canaux polarisés : 443, 670 et 865 nm.

Un algorithme permettant de restituer l'altitude des couches d'aérosols a été élaboré au LOA [Gérard, 2006]. En résumé, cet algorithme utilise le fait que le canal à 443 nm est sensible à l'altitude de la couche d'aérosol. À l'aide des canaux à 670 et 865 nm, l'épaisseur optique et le modèle d'aérosol sont déterminés. On détermine ensuite à l'aide d'un code de transfert radiatif [Deuzé et al., 1988] la luminance polarisée à 443 nm pour différentes altitudes de la couche d'aérosol et on sélectionne alors celle qui permet de retrouver au mieux le signal mesuré.

Une étude a été menée par Benoit Gérard, concernant la restitution de l'altitude des aérosols dans l'ouest du Canada en août 2003. Cette étude a montré que certaines couches d'aérosols atteignaient l'altitude de 15 km. Notons également qu'en cas de scène nuageuse, l'algorithme ne peut détecter la présence d'aérosols au-dessus du nuage. Ainsi, seule une mesure de POLDER correspond à une mesure de SAGE III (l'événement 10). Ces deux mesures ne sont ni colocalisées ni simultanées. La mesure SAGE III a eu lieu le 19 août (3h TU) et la scène POLDER le 18 août (vers 18h TU). Une rétrotrajectoire (effectuée avec le logiciel HYSPLIT) de 24h effectuée à partir de la mesure de SAGE III montre que la masse d'air sondée par SAGE III correspond bien à celle de POLDER. La figure 5.8 montre cette rétrotrajectoire ainsi que l'altitude des aérosols selon POLDER. Il apparaît que l'instrument de POLDER a détecté des aérosols à près de 15 km (vers 55° nord et 115° ouest) dans la basse stratosphère (la tropopause étant située à 11.8 km). Dans ces zones, l'épaisseur optique est de l'ordre de 1.5 à 2 à 443 nm. Le profil SAGE III correspondant (voir figure 5.6) présente quant à lui une augmentation du coefficient d'extinction des aérosols vers 12 - 13 km et vers 15 - 16 km.

Comme on l'a dit précédemment, l'absence d'autres mesures corrélatives POLDER 2 et SAGE III ne nous a pas permis de poursuivre cette étude.

En conclusion, les aérosols observées dans la basse stratosphère sont probablement originaires des intenses feux de forêts de l'ouest canadien. Cependant, aucune preuve formelle n'a pu être établie à partir de ces observations. La prochaine étape permettant d'abonder vers cette hypothèse est la détermination des propriétés microphysiques de ces aérosols à partir des mesures spectrales de SAGE III.

## 5.3 Propriétés microphysiques des aérosols de feux de forêt

L'analyse des variations spectrales des coefficients d'extinction des aérosols des événements SAGE III va nous permettre de restituer les propriétés microphysiques des aérosols responsables de la forte extinction observée dans la basse stratosphère. Ces propriétés sont le rayon effectif et les densités de surface et de volume des aérosols. Nous

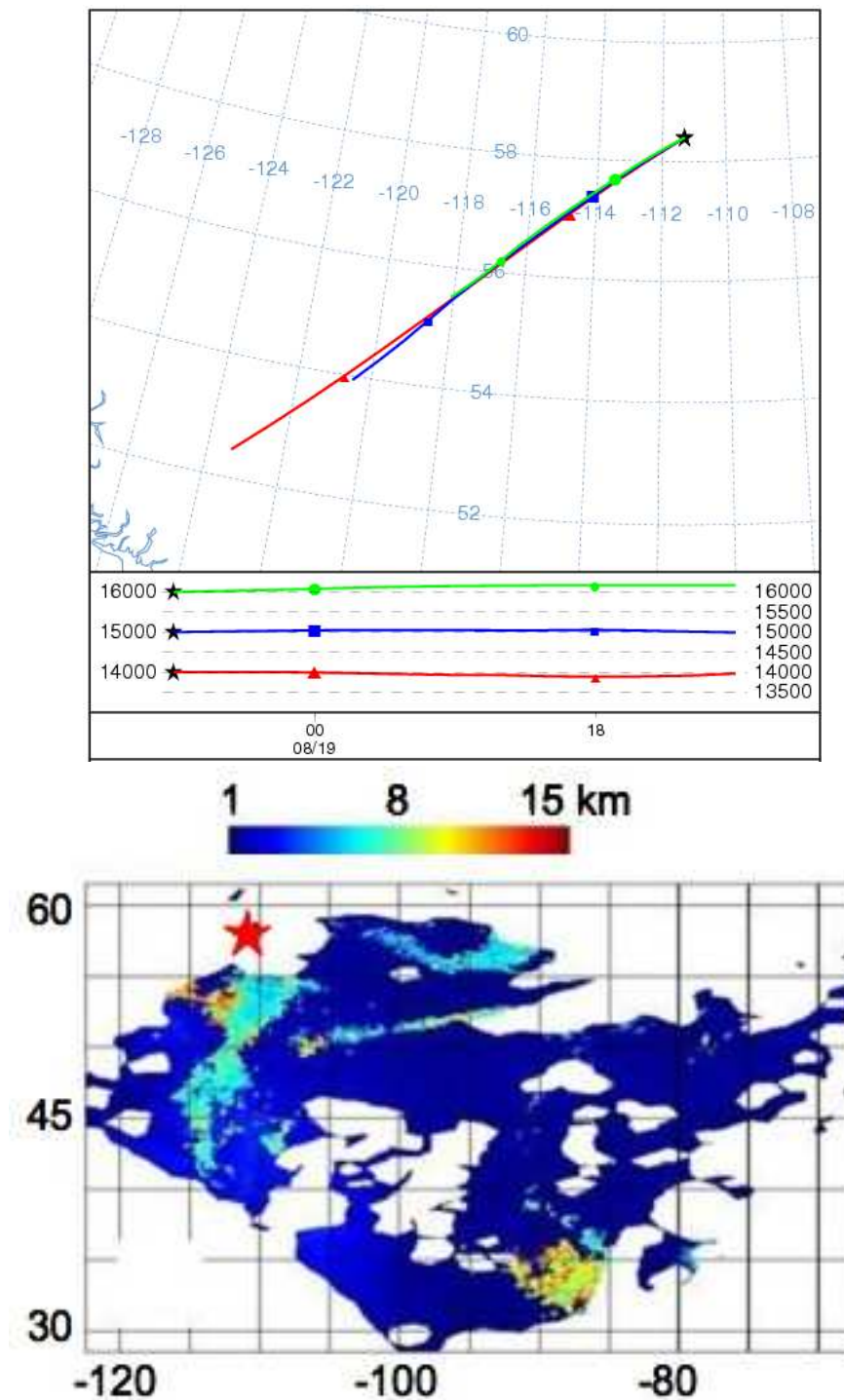


FIG. 5.8 – Rétrotrajectoires issues des points de la mesure SAGE III du 19 août (en haut) et altitude des aérosols obtenues à partir des mesures de POLDER-2 le 18 août 2003 (en bas). L'étoile correspond à la position de la mesure SAGE III du 19 août.

déterminerons également la concentration d'aérosols. Ces notions sont définies à partir de la distribution en taille des aérosols et de leur indice de réfraction (voir section 2.1.2.4).

### 5.3.1 Méthode

Nous supposons les particules stratosphériques de forme sphérique afin de pouvoir appliquer la théorie de Mie (voir section 2.3.3.2). Nous supposons également différents indices de réfraction correspondant à des aérosols sulfatés contenant 75% en masse d'acide sulfurique et 25% en masse d'eau [Palmer and Williams, 1984], à des aérosols de feux de biomasse [Dubovik and King, 2000] et à des aérosols de suie [WCP, 1986]. Il faut noter ici que les indices utilisés par Dubovik and King [2000] correspondent à des aérosols issus de feux de la forêt amazonienne. Nous utiliserons tout de même ces indices faute d'indices de réfraction mieux adaptés aux aérosols issus des forêts de résineux canadiennes. Le tableau 5.2 présente ces indices de réfraction.

Longueur d'onde (nm)	Sulfate		Brûlis		Suie	
	n	k	n	k	n	k
448	1.455	$1. \cdot 10^{-8}$	1.531	0.04	1.75	0.454
520	1.454	$1. \cdot 10^{-8}$	1.537	0.033	1.75	0.450
675	1.452	$1. \cdot 10^{-8}$	1.551	0.020	1.75	0.430
755	1.449	$2. \cdot 10^{-8}$	1.556	0.018	1.75	0.430
869	1.447	$6. \cdot 10^{-7}$	1.590	0.015	1.75	0.430
1020	1.443	$1. \cdot 10^{-6}$	1.580	0.011	1.75	0.440

TAB. 5.2 – Indices de réfraction des aérosols sulfatés, des aérosols de brûlis et des aérosols composés de suie pour différentes longueurs d'onde. n est la partie réelle et k la partie imaginaire tel que  $m = n - ik$ .

La distribution en taille des aérosols stratosphériques sera ici considérée comme étant bien représentée par une fonction log-normale monomodale, ainsi, trois paramètres sont à considérer : le rayon médian  $r_m$ , la déviation standard géométrique  $\sigma_g$  et la concentration totale d'aérosols  $N_0$ . Pour s'affranchir de ce dernier paramètre, nous utiliserons des distributions normalisées. Un ensemble de 480 distributions est utilisé : 48 rayons médians (entre  $0.01 \mu\text{m}$  et  $10 \mu\text{m}$ ) et 10 déviations standards (entre 1.1 et 2). A partir des différentes fonctions log-normales, nous avons alors calculé les coefficients d'extinction des aérosols à 7 longueurs d'onde de SAGE III (448.5, 520.3, 675.6, 755.4, 869.3 et 1022.1 nm) pour chaque granulométrie et pour chaque indice de réfraction. Les canaux de SAGE III à 384.3, 601.2 et 1545 nm ne sont pas utilisés dans cette étude, ces trois canaux étant fortement bruités relativement aux autres. De plus, l'information fournie par le canal à 1545 nm est peu influente. En effet, les variations spectrales pour les grandes longueurs d'onde sont très faibles. L'ajustement effectué ne perd donc pas en précision sans ce canal. Nous avons ensuite stocké les rapports entre ces coefficients d'extinction et le coefficient d'extinction à 755.4 nm ( $k^{ext}(\lambda)/k^{ext}(755.4)$ ) dans 3 tables (une par indice de réfraction). Nous avons choisi cette longueur d'onde comme référence car l'ozone et le dioxyde d'azote n'absorbent pas (ou peu en ce qui concerne l'ozone) dans ce canal. De plus, les incertitudes associées aux coefficients d'extinction dans ce canal sont en moyenne faibles. Il suffit alors de trouver la distribution en taille (donc les paramètres  $r_m$  et  $\sigma_g$ )

dont les rapports des coefficients d'extinction se rapprochent le plus de ceux déduits de la mesure de SAGE III. A chaque altitude, on définit une grandeur rendant compte de la qualité de l'ajustement effectué noté AD (pour l'acronyme anglais Aerosol Difference) :

$$AD(z) = \sqrt{\frac{1}{NB} \sum_{i=1}^{NB} \left( \frac{\frac{k_{mes}^{ext}(\lambda_i)}{k_{mes}^{ext}(755)} - \frac{k_{mod}^{ext}(\lambda_i)}{k_{mod}^{ext}(755)}}{\frac{k_{mes}^{ext}(\lambda_i)}{k_{mes}^{ext}(755)}} \right)^2} \quad (5.2)$$

où NB représente le nombre de longueur d'onde utilisable à chaque altitude, les indices 'mes' et 'mod' désignent respectivement le coefficient d'extinction mesuré et celui calculé. La distribution en taille étant maintenant connue, il nous reste à calculer les paramètres intéressants : rayon effectif, densité de surface et de volume (voir la définition de ces paramètres dans la section 2.1.2.4). Le nombre de particules par unité de volume est calculé en faisant le rapport, à chaque longueur d'onde, entre le coefficient d'extinction déduit de la mesure et celui calculé avec la distribution log-normale normalisée la plus adaptée aux mesures. La moyenne sur toutes les longueurs d'onde utilisées nous fournit alors le nombre de particules par unité de volume ( $N_0$ ).

### 5.3.2 Résultats

Les résultats obtenus avec les indices de réfraction d'aérosols contenant des suies montrent que quelque soit l'événement SAGE III étudié, les ADs sont supérieures à 75% sur toute la gamme d'altitude étudiée. Nous pouvons donc conclure que les aérosols responsable des augmentations d'extinction observées dans la basse stratosphère ne sont pas constitués de suie.

Nous présenterons ici les résultats obtenus pour l'événement n°10 pour les indices de réfraction des aérosols sulfatés et des aérosols de feux de biomasse. Les résultats concernant les autres événements sont similaires. Ils sont présentés en annexe B.

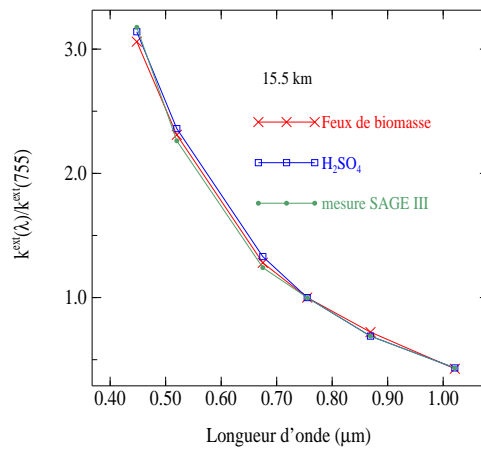


FIG. 5.9 – Ajustement des rapports d'extinction par la méthode des moindres carrés entre la mesure SAGE III n°10 (en vert) et la modélisation effectuée pour 2 jeux d'indices de réfractons différents (en rouge, pour les aérosols de feux de biomasse et en bleu pour les aérosols sulfatés).

L'ajustement entre la simulation et la mesure est effectué en fait à l'aide de 5 longueurs d'onde car on ajuste les rapports des coefficients d'extinction (le canal à 755 nm sert de référence). Cet ajustement pour l'événement n°10 est présenté sur la figure 5.9 pour les 2 jeux d'indices de réfraction différents. Peu de différences apparaissent entre les ajustements : ils sont tous les deux aussi bons. Cela est confirmé par la figure 5.10-(A) où est représenté le profil vertical de la différence aérosol. Les ADs sont inférieurs à 10% pour les deux ajustements entre 13 et 23 km. Globalement, la restitution des propriétés microphysiques des aérosols avec les mesures spectrales de SAGE III semble peu sensible à l'indice de réfraction utilisés. Nous avons effectué la même étude à partir de profils ne présentant pas d'augmentation du coefficient d'extinction des aérosols dans la basse stratosphère. Il en ressort que l'ajustement en considérant des indices de réfraction d'aérosols sulfatés est meilleur que celui obtenu en considérant les aérosols de feux de biomasse (quelques pourcents contre quelques dizaines de pourcents).

La figure 5.10-(B) présente les rayons effectifs des aérosols de l'événement n°10. On constate que les rayons effectifs obtenus pour les aérosols de feux de biomasse sont inférieurs à ceux obtenus pour les aérosols sulfatés sur l'intégralité du profil. Globalement, les aérosols de feux de biomasse ont un rayon effectif compris approximativement entre 0.1 et 0.15  $\mu\text{m}$  et ceux sulfatés entre 0.15 et 0.25  $\mu\text{m}$ . Au niveau du maximum d'extinction observé dans la basse stratosphère (à 15.5 km), les aérosols de feux de biomasse et ceux sulfatés ont un rayon effectif respectif de l'ordre de 0.12 et 0.14  $\mu\text{m}$ . Ces valeurs correspondent aux valeurs généralement observées pour les aérosols de fond [Lenoble and Brogniez, 1985, Thomason et al., 2006]. Ainsi, l'augmentation du coefficient d'extinction des aérosols observée à 15.5 km pour cet événement ne peut être imputé à l'augmentation de la taille des particules quel que soit le jeu d'indice de réfraction utilisé.

Les variances effectives sont représentées sur la figure 5.10-(C). On ne constate pas de différences flagrantes entre les variances effectives de la distribution obtenues à l'aide des indices de réfraction des aérosols de feux de biomasse et ceux sulfatés. En dessous de 20 km, les variances obtenues oscillent entre leur valeur minimale (0.009) et 0.6. Au-delà de 20 km, les variances sont faibles (entre 0.009 et 0.2). Nous observons à 15.5 km une variance de l'ordre de 0.3 pour les aérosols de feux de biomasse et de 0.4 pour les aérosols sulfatés. Ces valeurs sont supérieures à celles habituellement obtenues pour la modélisation des aérosols de fond (0.25 d'après [Lenoble and Brogniez, 1985]). Plusieurs autres valeurs supérieures à cette dernière sont obtenues à différentes altitudes, notamment entre 18 et 20 km.

Les figures 5.10-(D) et (E) présentent respectivement les densités de surface et de volume des aérosols détectés par SAGE III. Rappelons que les densités de surface des aérosols de fond sont de l'ordre de 0.5 à 1  $\mu\text{m}^2.\text{cm}^{-3}$  et que les densités de volume sont de l'ordre de 0.05 à 0.1  $\mu\text{m}^3.\text{cm}^{-3}$ . Nous observons ici trois pics vers 13, 15 et 19 km où les valeurs obtenues excèdent les valeurs pour les aérosols de fond. Les densités de surface y atteignent les valeurs de 4, 8 et 9  $\mu\text{m}^2.\text{cm}^{-3}$  pour les aérosols de feux de biomasse et 4, 5 et 6  $\mu\text{m}^2.\text{cm}^{-3}$  pour les aérosols sulfatés. Quant aux densités de volume, elles atteignent 0.1  $\mu\text{m}^3.\text{cm}^{-3}$  à 19 km et 0.2  $\mu\text{m}^3.\text{cm}^{-3}$  à 13 et 15 km. Les augmentations des densités de surface et de volume à 13 et à 15 km sont corrélées à l'augmentation du coefficient d'extinction. Le pic à 19 km correspond aussi à un pic d'extinction mais de moindre ampleur (voir la figure 5.6 et 5.10).

L'examen des densités de particules (figure 5.10-(F)) montre une augmentation prononcée du nombre de particules dans la stratosphère au niveau des maximums d'extinction ob-

servés (c'est à dire à 13, 15 et 19 km) quelle que soit la nature des particules (aérosols de feux de biomasse ou aérosols sulfatés). Aux niveaux des pics observés, les densités de particules obtenues si on considère des aérosols de feux de biomasse sont supérieures à celles obtenues pour les aérosols sulfatés : elles atteignent 700, 300 et 200 particules.cm<sup>-3</sup> pour les aérosols de feux de biomasse et 200, 50 et 150 particules.cm<sup>-3</sup> pour les aérosols sulfatés à 13, 15 et 19 km. L'augmentation du nombre de particules dans la basse stratosphère explique donc l'augmentation de l'extinction des aérosols à ces niveaux. Les intenses feux de forêt peuvent ainsi être à l'origine d'une intrusion d'aérosols de feux de biomasse dans la basse stratosphère.

## 5.4 Conclusions

Les intenses feux de forêt de l'ouest canadien (Colombie Britannique et Alberta) ont généré d'importants panaches d'aérosols. Plusieurs capteurs satellitaires ont détecté la signature de ces aérosols. L'instrument MODIS recense plusieurs images en couleurs recomposées de ces feux de forêts. Les panaches de fumées y sont clairement identifiables. L'indice aérosol déduit des mesures de l'instrument TOMS a enregistré en août 2003 d'importantes valeurs. Cependant, ces 2 seuls capteurs ne permettent de déterminer ni l'altitude, ni la nature des aérosols. Les profils verticaux des coefficients d'extinction des aérosols issus des mesures de plusieurs événements SAGE III dans l'ouest du Canada à cette période de l'année présentent une forte augmentation dans la basse stratosphère. La présence de cette couche d'aérosol très élevée peut être due à des phénomènes de pyroconvection et donc être issue de ce feux de forêts. Une étude basée sur les mesures polarisées de l'instrument POLDER 2 a également révélé la présence d'aérosols dans la basse stratosphère (vers 15 km) le 18 août 2003. Un événement SAGE III du 19 août ayant détecté une couche d'aérosols dans la basse stratosphère est connecté à la mesure de POLDER 2. En effet, l'historique de la masse d'air sondée par SAGE III a été reconstruit et il s'avère qu'elle est passée par la zone où POLDER 2 a détecté une couche d'aérosol dans la basse stratosphère. Malheureusement, aucun autre événement POLDER 2 n'a pu être traité. En effet, aucune coïncidence spatio-temporelle entre POLDER 2 et SAGE III n'a été trouvée, même après étude des historiques de masses d'air.

La restitution des propriétés microphysiques des aérosols, basée sur la théorie de Mie, sur les variations spectrales de SAGE III a montré que l'on ne peut pas déterminer la nature de ces aérosols. Néanmoins, nous avons pu conclure que les aérosols détectés ne sont pas de dimensions supérieures à celles des aérosols de fond. La raison de l'augmentation du coefficient d'extinction des aérosols dans la basse stratosphère a été imputée à l'augmentation du nombre de particules par unité de volume dans la basse stratosphère causée par les intenses feux de forêt.

Cette étude peut être approfondie par l'examen de l'intégralité des archives des instruments d'occultation solaire pour détecter d'autres événements de ce type. De plus, les indices de réfraction des aérosols issus des feux de forêt dépendent fortement du combustible considéré. Ainsi, une meilleure caractérisation de l'indice de réfraction s'avère nécessaire pour déterminer les propriétés microphysiques des aérosols stratosphériques. L'introduction de distribution bimodale pourrait également améliorer cette restitution. Aujourd'hui, une telle étude pourrait être efficacement améliorée par les données du lidar CALIOP (Cloud-Aerosol Lidar with Orthogonal Polarization).

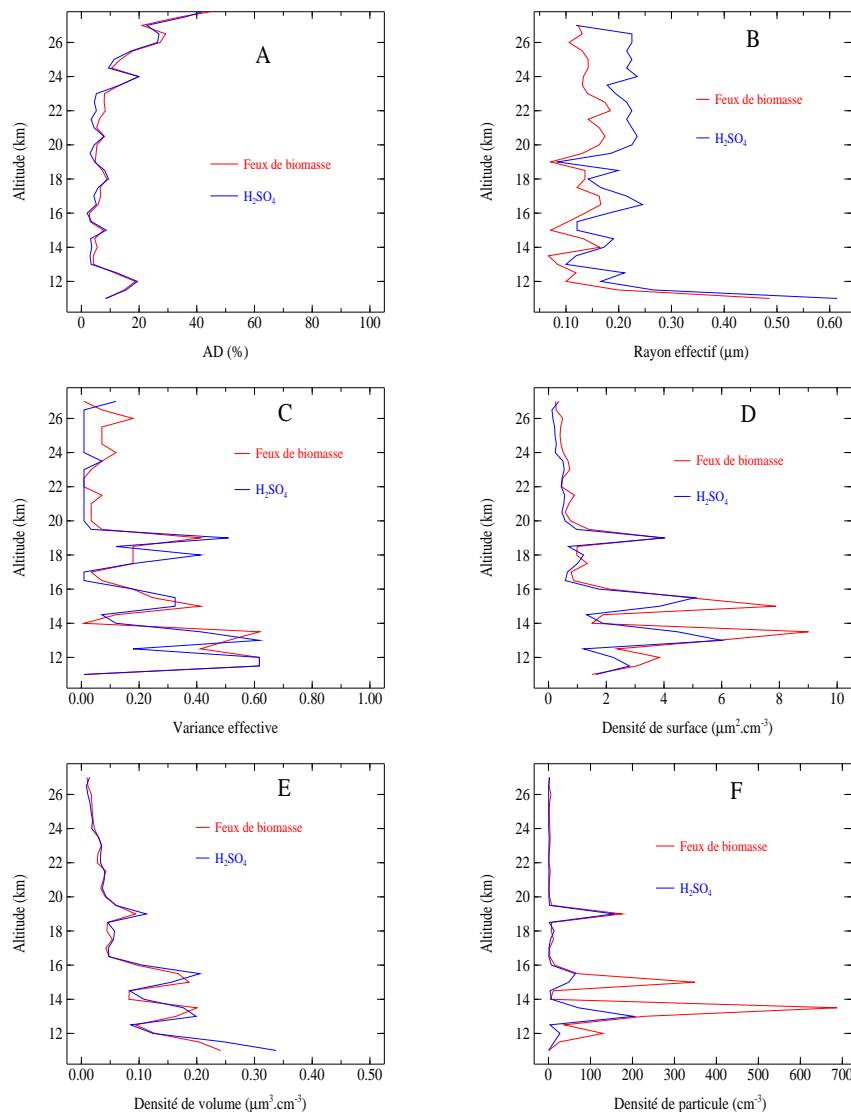


FIG. 5.10 – Profils verticaux représentant la qualité des ajustements effectués (en A) pour l'événement n°10, les rayons effectifs des aérosols (en B), leurs variances effectives (en C), leurs densités de surface (en D), de volume (en E) et de particules (en F) pour 2 jeux d'indices de réfraction : en rouge pour les aérosols de feux de biomasse et en bleu pour les aérosols sulfatés.

## Chapitre 6

# Validation des mesures des instruments de ACE-SCISAT

Depuis la fin des missions SAGE II, SAGE III et POAM III, les instruments de la mission ACE-SCISAT sont les seuls à effectuer des mesures d'occultation solaire de façon routinière (hormis SOFIE en orbite depuis avril 2007). Il nous est ainsi apparu opportun de poursuivre nos études de la stratosphère en nous intéressant aux données de ces instruments. Les travaux présentés dans ce chapitre s'inscrivent dans le cadre de la validation des produits issus des mesures des instruments du satellite ACE-SCISAT. Ces produits seront comparés à ceux issus d'une mesure in situ de l'instrument SPIRALE (le 20 janvier 2006 à Kiruna) ainsi qu'aux mesures de télédétection de SAGE II et de SAGE III. Chronologiquement, cette étude a commencé par les comparaisons entre les coefficients d'extinction des aérosols issus des mesures de ACE-Imager et ceux issus des mesures de SAGE II et SAGE III (LaRC). Par la suite, nous nous sommes intéressés aux comparaisons entre les rapports de mélange en ozone et en dioxyde d'azote déduits de ACE-FTS et de ACE-MAESTRO et ceux déduits des mesures de SAGE III. Cette étude étant déjà effectuée par une équipe américaine, nous l'avons tout de même effectuée mais avec notre produit SAGE III. Finalement, connaissant les vols des instruments SPIRALE et SALOMON en janvier 2006, nous avons proposé à l'équipe du LPCE d'effectuer les comparaisons entre les données de ces instruments et celles de ACE-FTS et ACE-MAESTRO. Malheureusement, le vol SALOMON (16 janvier 2006) n'est pas exploitable pour ces comparaisons, faute de coïncidences directes ou indirectes.

Nous présenterons successivement les résultats de la validation des produits de l'instrument ACE-FTS, de ACE-MAESTRO et enfin de ACE-Imager, ces trois instruments étant décrits dans le chapitre 3.

Plusieurs articles en cours de publication ou publiés intègrent les résultats issus de cette étude.

### 6.1 ACE-FTS

#### 6.1.1 Introduction

Les produits de l'instrument ACE-FTS (que l'on notera dans la suite simplement FTS par souci de simplification) utilisés dans cette partie sont issus de la version 2.2 de l'algorithme d'inversion [Boone et al., 2005]. Brièvement, les paramètres restitués (profils



verticaux de température, de pression et de rapports de mélange de plus de 30 espèces différentes) sont déterminés simultanément selon la méthode non linéaire de Levenberg-Marquardt. Le processus consiste en deux étapes. Tout d'abord, les profils de pression et de température sont déduits des spectres mesurés en utilisant les micro-fenêtres contenant les raies d'absorption de  $\text{CO}_2$ . Le rapport de mélange de chaque espèce est alors calculé avec ces profils de température et de pression en combinant les informations de plusieurs micro-fenêtres sélectionnées de façon à minimiser les interférences gazeuses. Pour la détermination de ces rapports de mélange, des profils verticaux 'a-priori' sont requis. Ils sont issus des profils obtenus par ATMOS (Atmospheric Trace MOlecule Spectroscopy), instrument similaire à FTS qui opéra à diverses reprises à bord de la navette spatiale ATLAS (en 1985, 1992, 1993 et 1994) [Gunson et al., 1996]. Il est intéressant de noter que les produits finaux ne sont pas sensibles à ces profils a priori. Les paramètres spectroscopiques nécessaires aux calculs des rapports de mélanges des diverses espèces sont issus de la compilation HITRAN 2004 [Rothman et al., 2005]. Les incertitudes fournies avec les rapports de mélange correspondent à l'erreur statistique issue du processus de moindres carrés utilisé. Elles n'incluent pas notamment les incertitudes systématiques. Rappelons que la résolution verticale de FTS dépend de la géométrie d'observation, varie avec l'altitude tangente (sans excéder 3 à 4 km). Les produits sont disponibles sur cette grille non uniforme (qu'on nommera grille tangente) et sur une grille interpolée tous les kilomètres (grille que l'on qualifiera d'interpolée) par une méthode quadratique. Nous confronterons dans les paragraphes suivants les produits FTS avec ceux obtenus par l'instrument in situ SPIRALE et par l'instrument de télédétection SAGE III (LOA).

## 6.1.2 SPIRALE

### 6.1.2.1 Préambule

L'instrument SPIRALE est décrit dans la section 4.6 et dans l'article de Moreau et al. [2005]. La mesure de SPIRALE a eu lieu le 20 janvier 2006 entre 17h45 et 19h45 (TU). La nacelle a pris son envol depuis la base de Kiruna ( $67.7^\circ$  nord,  $21.55^\circ$  est). La prise de mesure a été effectuée seulement durant la montée du ballon. Au cours de son ascension, la nacelle n'a pratiquement pas dérivé : seulement  $\pm 0.2^\circ$  en latitude et en longitude. La gamme d'altitude s'étend de 13 à 28 km pour toutes ces espèces sauf pour le dioxyde d'azote mesuré entre 17 et 28 km.

Aucune mesure des instruments ACE n'est colocalisée spatialement et temporellement avec la mesure de SPIRALE. Seule la mesure ACE du 21 janvier 2006 nommée sr13151 permet une comparaison. Le point subtangent à 30 km de cette mesure de ACE est localisé à 380 km de Kiruna ( $64.28^\circ$  nord et  $21.56^\circ$ ). Elle a eu lieu à 8h (TU) soit 14h après le début du vol de SPIRALE. Une analyse dynamique des masses d'air est alors requise pour s'assurer que les deux masses d'air sondées à plusieurs heures d'intervalle par les deux instruments sont semblables. Cette analyse est effectuée avec le modèle MIMOSA [Hauchecorne et al., 2002]. Les cartes de vorticit  potentielle sont pr sent es sur les figures 6.1. Il s'av re que la situation dynamique entre les deux mesures est relativement stable   tous les niveaux inf rieurs   26 km : l'accord entre les vorticit s potentielles est inf rieur   10%, les deux mesures  tant effectu es   l'int rieur du vortex polaire. Cependant, au-dessus de 26 km, la mesure de ACE est tr s proche de la fronti re du vortex (figures non pr sent es). Ainsi, les conditions g ophysiques permettent une comparaison directe des

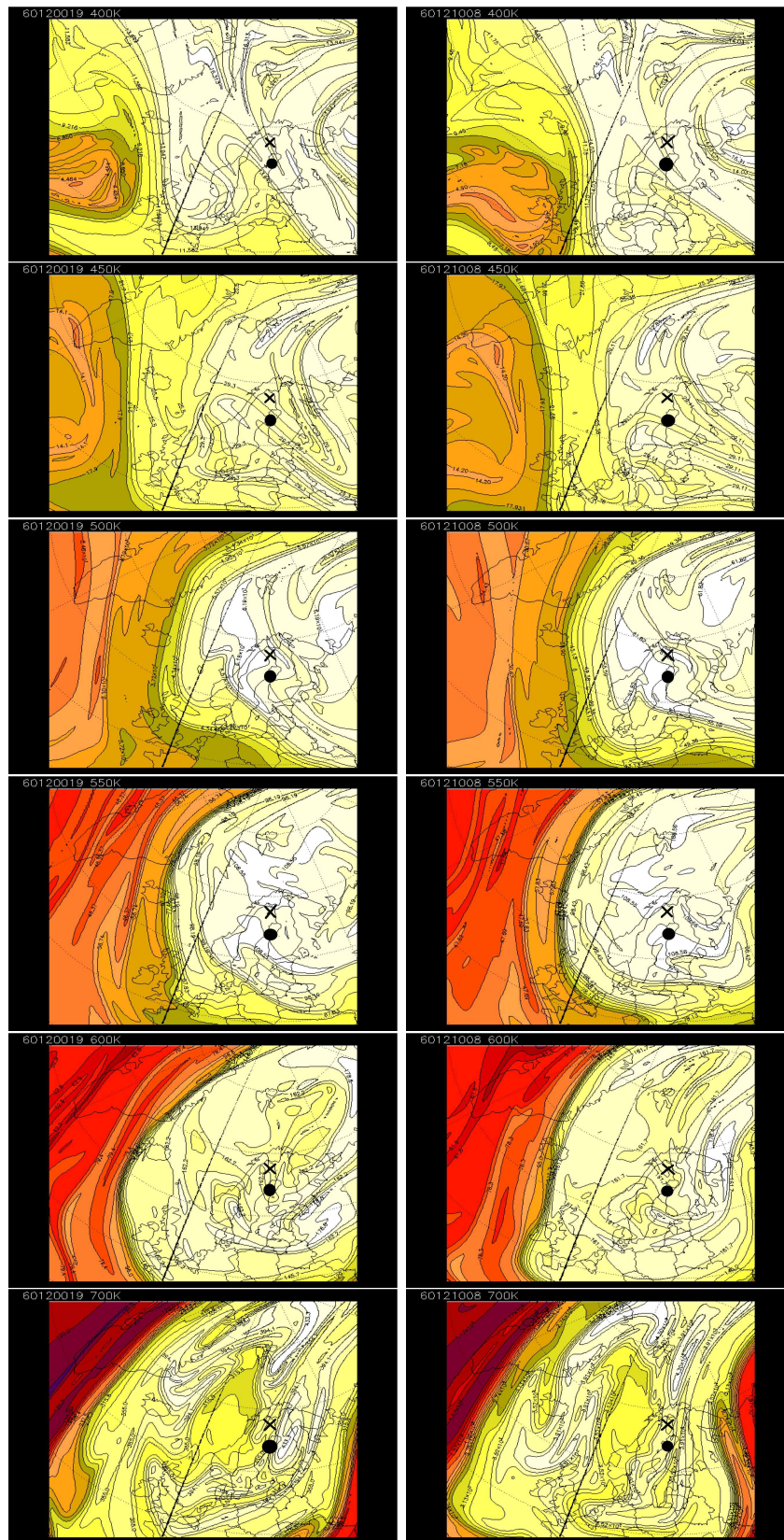


FIG. 6.1 – Cartes de vorticité potentielle correspondantes aux moments de la mesure de SPIRALE (figures de gauches) et de celle de ACE (figures de droites) pour différentes altitudes. De haut en bas : à 16, 19, 21, 23, 24 et 26 km. La position de SPIRALE est repérée par une croix et celle du point subtangent de ACE par un point. Cartes fournies par F. Coquelet, LPCE Orléans.

espèces à longue durée de vie (telles  $O_3$ ,  $N_2O$ ,  $CO$ ,  $CH_4$ ,  $HCl$  et  $HNO_3$ ). Pour le dioxyde d'azote, espèce très réactive (voir figure 4.55), il faudra prendre en compte les variations diurnes.

Les résolutions verticales des instruments sont très différentes : quelques mètres pour SPIRALE et quelques kilomètres pour FTS. Ainsi, la comparaison entre les profils verticaux ne peut se faire qu'en dégradant la résolution de SPIRALE. A chaque altitude, la mesure SPIRALE est convoluée suivant les indications de l'équipe scientifique de l'instrument FTS avec une fonction triangulaire dont la largeur à la base est prise constante, égale à 3 km, représentative de la résolution verticale de FTS.

Un compteur de particules STAC (Stratospheric and Tropospheric Aerosol Counter) était également installé sur la nacelle. Nous étudions ici les résultats observés dans trois gammes de tailles : 0.7 à 0.9  $\mu m$ , 0.9 à 1.3  $\mu m$  et 1.3 à 2  $\mu m$ . Au cours de son ascension, le compteur de particules a détecté à 20 km, une couche d'aérosols de 1 km d'épaisseur (voir la figure 6.2). Cette couche est constituée notamment d'aérosols de dimension supérieure au micromètre. Il s'agit probablement d'un PSC. L'étude du profil de température de cette couche d'aérosols ainsi que l'étude de son historique va nous permettre de le confirmer. Le profil de température enregistré lors de la montée du ballon est représenté sur la figure 6.3. On constate que les températures enregistrées au niveau du supposé PSC sont de l'ordre de 195 - 196 K. Ces températures correspondent au seuil de formation de PSC de type Ia (NAT). Nous avons alors étudié le passé de cette couche d'aérosol à l'aide du logiciel HYSPLIT en partant des altitudes 20, 21 et 22 km à la date du 20 janvier 2006, 18h (TU). Il s'avère que, depuis le 18 janvier à 12h, les températures observées le long des trois rétrotrajectoires sont de l'ordre de 196 à 197 K. Cette longue exposition à de faibles températures, toutefois supérieures à 195 K, a pu favoriser le développement de particules de PSC correspondant à la détection effectuée par STAC. Une étude plus approfondie est en cours au LPCE pour comprendre la formation de ce PSC dans ces conditions géophysiques.

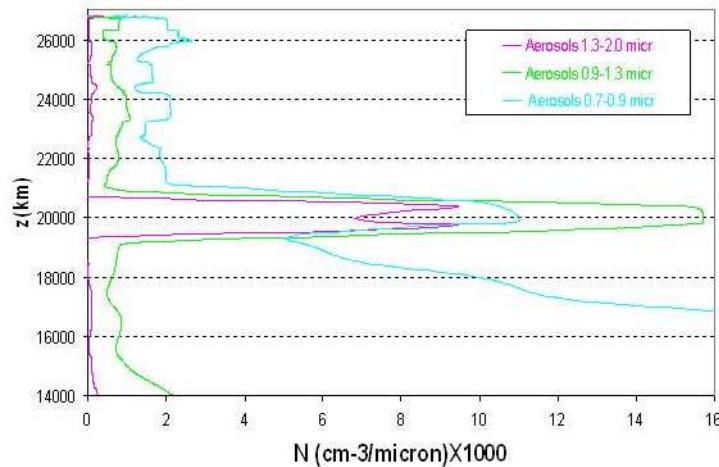


FIG. 6.2 – Profils verticaux des concentrations en aérosol dans trois gammes de taille détectées par le compteur de particules STAC.

Comme nous le verrons dans les paragraphes qui suivent, ce PSC est à l'origine des structures particulières observées sur certains profils SPIRALE.

Nous allons, dans la suite, présenter les comparaisons espèce par espèce entre les profils

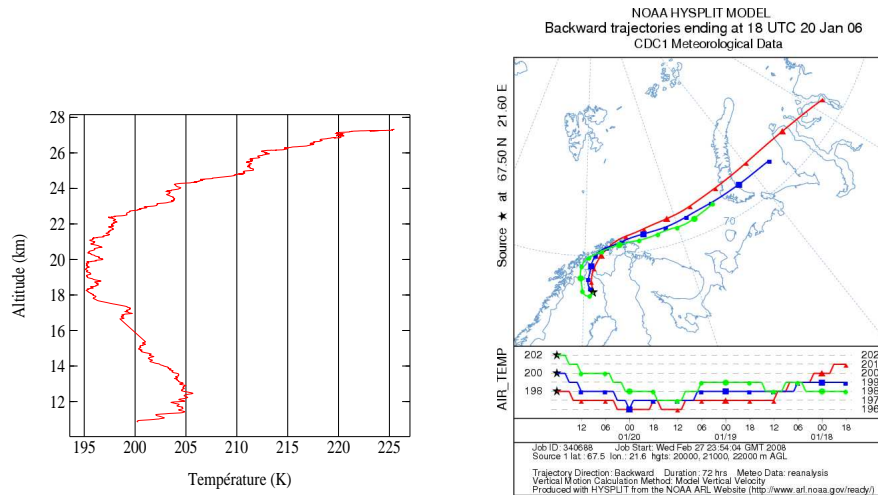


FIG. 6.3 – A gauche, profil vertical des températures enregistrées pendant le vol de SPIRALE. A droite, rétrotrajectoires issus des points de la mesure de SPIRALE à 20, 21 et 22 km et températures le long de ces trajectoires calculées par le modèle HYSPLIT.

SPIRALE et les profils de la mesure ACE sr13151. Il est nécessaire de garder à l'esprit toutes les spécificités de ces comparaisons présentées ci-dessus.

### 6.1.2.2 $O_3$

Les profils d'ozone version 2.2 dit 'update' de l'instrument FTS ont subi une importante modification par rapport à la version 2.2. En effet, le produit version 2.2 utilise deux ensembles de micro-fenêtres, l'une vers  $5 \mu\text{m}$  ( $2000 \text{ cm}^{-1}$ ) et l'autre vers  $10 \mu\text{m}$  ( $1000 \text{ cm}^{-1}$ ). Il a été constaté un biais de 10% avec d'autres instruments satellitaires au niveau du maximum de concentration en ozone. Ce biais a été imputé à l'utilisation de ces deux ensembles de micro-fenêtres. En ne gardant que la micro-fenêtre à  $10 \mu\text{m}$ , ce biais disparaît. Ainsi, l'archive des données de ACE-FTS a été retraitée avec le nouveau calcul du rapport de mélange de l'ozone. Un produit ozone nommé 'version 2.2 update' a ainsi été généré. C'est ce produit que nous utiliserons ici.

Les différences relatives  $DIFF(z)$  sont calculées à chaque altitude  $z$  comme suit :

$$DIFF(z) = 200 * \frac{O_3^{FTS}(z) - O_3^{SPI}(z)}{O_3^{FTS}(z) + O_3^{SPI}(z)} \quad (6.1)$$

Pour la détermination du rapport de mélange en ozone, l'algorithme d'inversion de SPIRALE utilise les raies d'absorption à  $2086.0191$  et  $2086.4294 \text{ cm}^{-1}$ . Les incertitudes sur cette détermination, sont de 6% au-dessus de 18 km et de 8% en-dessous. Cette incertitude est la racine carrée de la somme des carrés des erreurs systématiques (largeur spectrale de la raie laser et non linéarité du détecteur) et aléatoires (fluctuation du signal laser et rapport signal sur bruit). Les résultats sont présentés sur la figure 6.4.

L'accord entre les 2 mesures est bon, les différences relatives sont comprises entre  $\pm 7\%$ . Au-dessus de 21 km, le rapport de mélange FTS est systématiquement supérieur à celui de SPIRALE. Ces résultats sont repris dans l'article de Dupuy et al. [2008].



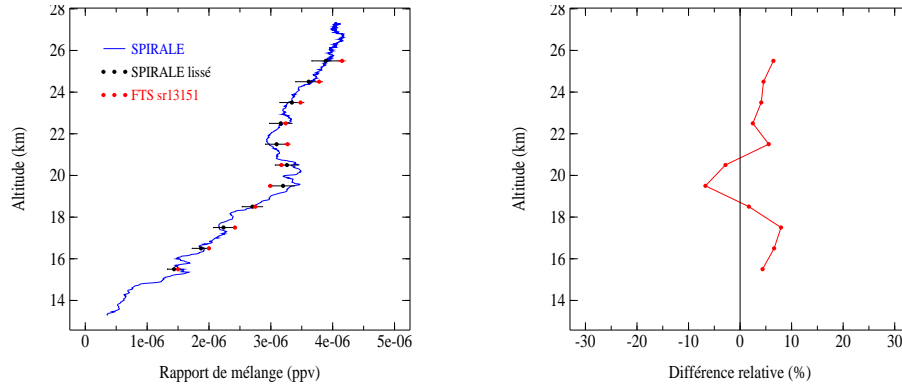


FIG. 6.4 – A gauche, profils verticaux des rapports de mélange en ozone de la mesure FTS sr13151 (en rouge) et de la mesure SPIRALE (en bleu). Les points noirs correspondent aux mesures SPIRALE convoluées (voir texte). Les incertitudes sont reportées sur les profils FTS et SPIRALE convolués. A certains niveaux, elles sont si faibles qu'elles ne sont pas distinguables. A droite, profil vertical des différences relatives calculées selon l'équation 6.1 avec le profil SPIRALE lissé.

### 6.1.2.3 NO<sub>2</sub>

Les micro-fenêtres utilisées par l'algorithme de FTS sont situées entre 1581 et 1642 cm<sup>-1</sup>. Dans ces micro-fenêtres, seuls certains isotopes de la vapeur d'eau présentent une faible absorption. SPIRALE utilise quant à lui, les raies centrées à 1598.5 et 1598.8 cm<sup>-1</sup>. L'incertitude sur la mesure de SPIRALE a été estimée à 50% en-dessous de 23.8 km, 20% entre 23.8 km et 24.28 km et 6% au-dessus de 24.28 km.

La comparaison concernant le dioxyde d'azote nécessite de prendre en compte les variations de cette espèce dans le temps. En effet, les deux mesures comparées ici sont espacées de 14h, celle de SPIRALE étant nocturne et celle de FTS au lever de soleil. Pour prendre en compte cette variation, les résultats d'un modèle de photochimie développé par C. McLinden sont disponibles sur le site dédié aux instruments de la mission ACE<sup>1</sup> [McLinden et al., 2006]. A partir de la connaissance du rapport de mélange de NO<sub>2</sub> à une date  $t_1$ , ce modèle permet de calculer le rapport de mélange à une date  $t_2$  :

$$VMR(z, t_2) = VMR(z, t_1) * \frac{VMR_{mod}(z, t_2)}{VMR_{mod}(z, t_1)} \quad (6.2)$$

où  $VMR_{mod}(z, t_2)$  et  $VMR_{mod}(z, t_1)$  sont les rapports de mélange aux dates  $t_1$  et  $t_2$  issus du modèle.

Les résultats sont présentés sur la figure 6.5. Les différences relatives sont calculées suivant l'équation 6.1. Il apparaît un évident désaccord entre le profil SPIRALE et les profils FTS. Le profil SPIRALE présente en-dessous de 24 km, un rapport de mélange proche de zéro (en tenant compte des barres d'erreur). Cela est conforme avec la dénoxyfication habituellement observée dans le vortex polaire et avec les connaissances actuelles sur la chimie stratosphérique polaire. Le profil SPIRALE est également en accord avec un profil simulé par le modèle REPROBUS (REactive Processes Ruling the Ozone BUDget in the Stratosphere) [Lefèvre et al., 1998]. Les profils FTS, corrigés ou non, ne présentent pas de rapports de mélange proches de zéro. FTS détecte au contraire une concentration en

<sup>1</sup><http://www.ace.uwaterloo.ca/>

$\text{NO}_2$  non négligeable dans la basse stratosphère. La correction effectuée sur le rapport de mélange de FTS (équation 6.2) conduit, en accord avec les variations naturelles du  $\text{NO}_2$ , à une augmentation de ce rapport, dégradant alors la comparaison. En-dessous de 24 km, les différences relatives sont comprises entre 50 et 120% pour FTS non corrigé et entre 110 et 160% pour FTS corrigé. Ce désaccord est attribué aux inhomogénéités le long de la ligne de visée de FTS à haute altitude générant des concentrations non nulles en  $\text{NO}_2$  dans la basse stratosphère. Ces inhomogénéités résultent d'une situation dynamique complexe à haute altitude où la ligne de visée traverse des masses d'air en dehors du vortex (riche en  $\text{NO}_2$ ) et à l'intérieur du vortex (pauvre en  $\text{NO}_2$ ) [Berthet et al., 2007]. Dans ces cas, l'hypothèse d'homogénéité sphérique de la stratosphère, hypothèse utilisée dans tous les algorithmes d'inversion des mesures au limbe, est à remettre en cause. Au-dessus de 24 km, les rapports de mélange de  $\text{NO}_2$  déduits des mesures de SPIRALE augmentent et le désaccord entre les 2 instruments se réduit alors à moins de 50%. Ces résultats sont repris dans l'article de Kerzenmacher et al. [2008].

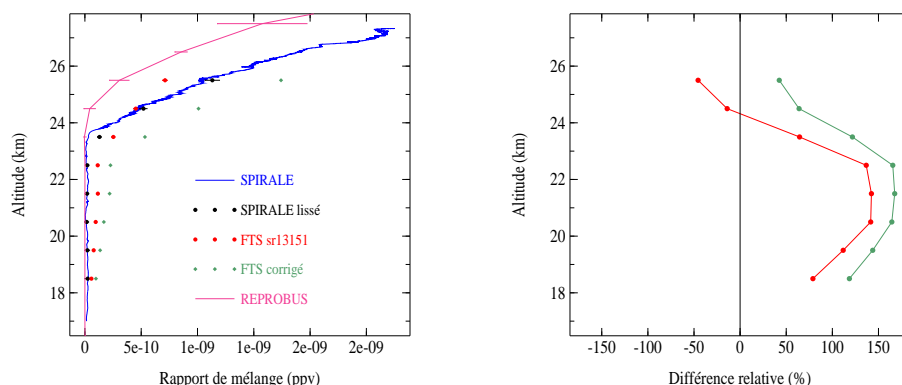


FIG. 6.5 – A gauche, profils verticaux des rapports de mélange en  $\text{NO}_2$  de la mesure FTS sr13151 (en rouge), de la mesure SPIRALE (en bleu) et du modèle REPROBUS (en rose). Les points noirs correspondent aux mesures SPIRALE convoluées (voir texte) et les points vert aux mesures FTS corrigées. Les incertitudes sont reportées sur les profils FTS, SPIRALE et REPROBUS convolués. A certains niveaux, elles sont si faibles qu'elles ne sont pas distinguables. A droite, profils verticaux des différences relatives calculées selon l'équation 6.1.

#### 6.1.2.4 $\text{N}_2\text{O}$

Le protoxyde d'azote est une molécule très importante dans l'atmosphère : elle constitue la principale source des oxydes d'azote dans l'atmosphère et est un gaz à effet de serre très puissant. Son suivi revêt alors une importance de premier ordre. La source de cette molécule est localisée à la surface du globe. Inerte dans la troposphère, elle migre vers la stratosphère à travers la tropopause tropicale. Dans la stratosphère, 90% du  $\text{N}_2\text{O}$  est photolysé par le rayonnement UV (185 à 220 nm). Les 10% restants sont à l'origine des oxydes d'azote stratosphériques. Ainsi, dans la stratosphère, le rapport de mélange de  $\text{N}_2\text{O}$  diminue avec l'altitude.

L'algorithme de l'instrument FTS utilise 69 micro-fenêtres centrées à 1200, 1905, 2210, 2455 et 2555  $\text{cm}^{-1}$ . Dans ces fenêtres, les molécules interférentes sont  $\text{CO}_2$ ,  $\text{O}_3$  et  $\text{CH}_4$ , leurs concentrations sont restitués simultanément. SPIRALE utilise la raie d'absorption

à  $1275.49 \text{ cm}^{-1}$ . L'incertitude sur la restitution de SPIRALE est estimée à 3% en-dessous de 26 km et 6% au-dessus.

Les résultats sont présentés sur la figure 6.6. En-dessous de 25 km, l'accord est assez bon : les différences relatives (calculées selon l'équation 6.1) sont comprises entre -15 et 19%. A 25.5 km, les rapports de mélange issus des 2 instruments sont très faibles. La différence relative y atteint 49%. Entre 17 et 24 km, les rapports de mélange de  $\text{N}_2\text{O}$  issus de la mesure de FTS sont systématiquement inférieurs à ceux issus de la mesure de SPIRALE. Les résultats de cette étude ont été publiés dans l'article de Strong et al. [2008].

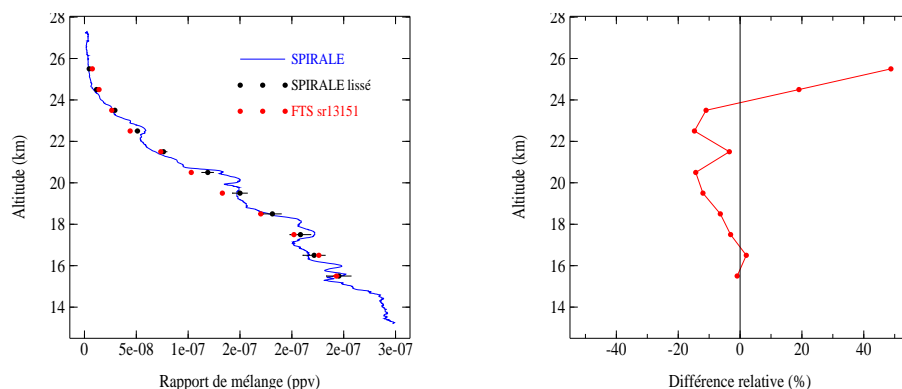


FIG. 6.6 – A gauche, profils verticaux des rapports de mélange en  $\text{N}_2\text{O}$  de la mesure FTS sr13151 (en rouge) et de la mesure SPIRALE (en bleu). Les points noirs correspondent aux mesures SPIRALE convoluées (voir texte). Les incertitudes sont reportées sur les profils FTS et SPIRALE convolués. A certains niveaux, elles sont si faibles qu'elles ne sont pas distinguables. A droite, profil vertical des différences relatives calculées selon l'équation 6.1.

### 6.1.2.5 $\text{HNO}_3$

La molécule d'acide nitrique intervient dans la chimie de destruction de l'ozone polaire (voir section 2.2.3). Rappelons simplement que la photolyse de l'acide nitrique au retour du soleil (après la longue nuit polaire) enrichit la stratosphère en  $\text{NO}_2$ . Celui-ci désactive alors les molécules chlorées interrompant ainsi le cycle de destruction de l'ozone. Au cours de la nuit polaire, l'acide nitrique est en grande quantité au niveau des PSC (voir la réaction hétérogène R23 de la section 2.2.3.4). Si les températures restent suffisamment basses, les particules de PSC croissent et sédimentent, entraînant avec elles l'acide nitrique : c'est la dénitrification.

Pour restituer les profils verticaux d'acide nitrique, l'instrument FTS utilise des micro-fenêtres situées entre  $867$  et  $880 \text{ cm}^{-1}$  et entre  $1691.5$  et  $1728.6 \text{ cm}^{-1}$ . Plusieurs espèces interfèrent dans ces régions :  $\text{H}_2\text{O}$ ,  $\text{O}_3$ ,  $\text{N}_2\text{O}$  et  $\text{CH}_4$ . Ces molécules seront restituées simultanément. En-dessous de 10 km, seule l'information des micro-fenêtres centrées à  $873.5 \text{ cm}^{-1}$  est utilisable. Au-dessus de 35 km, les micro-fenêtres centrées à  $1710 \text{ cm}^{-1}$  sont utilisés. Entre 10 et 35 km, les 2 régions spectrales sont utilisées. SPIRALE utilise quant à lui, les raies de la micro-fenêtre  $1701.5$ - $1701.8 \text{ cm}^{-1}$ . L'erreur globale sur la mesure de SPIRALE a été estimée à 25% en-dessous de 17 km et 20% au-dessus.

Les figures 6.7 montrent les résultats de cette étude. On constate sur le profil SPIRALE une couche dénitrifiée entre 20.7 et 22 km, juste au-dessus de la couche d'aérosols

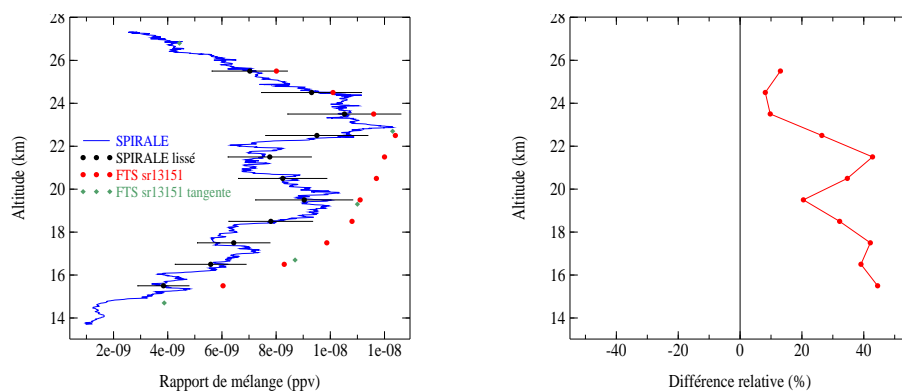


FIG. 6.7 – Identique à la figure 6.6 mais pour  $\text{HNO}_3$  et avec en plus, les rapports de mélange de FTS sur la grille tangente (en vert).

observée par STAC. Les rétrotrajectoires effectuées aux niveaux de cette couche dénitrifiée (voir la figure 6.3) montrent que les températures étaient de l'ordre de 196 -197 K depuis 2 journées, concordant ainsi avec la présence d'un PSC à ces altitudes. Au moment de la mesure de SPIRALE, celui-ci aurait sédimenté se trouvant alors vers 20 km. Au cours de sa sédimentation, le PSC entraîne avec lui les molécules d'acide nitrique, ce qui explique la couche dénitrifiée détectée par SPIRALE vers 21 km. Cette dénitrification n'est pas détectée par la mesure de FTS. En effet, la grille tangente de FTS pour cette orbite donne des rapports de mélange à 19.3 et 22.7 km (voir les points verts sur la figure 6.7). Ainsi, après interpolation sur la grille 1 km, FTS est incapable de restituer une structure particulière de 1.7 km d'épaisseur située entre 2 altitudes tangentes.

Les rapports de mélange de FTS sont systématiquement supérieurs à ceux de SPIRALE. Entre 15 et 23 km, les différences relatives sont de l'ordre de 20 à 45% et 13% au-dessus de 23 km. Une raison possible à ces différences réside dans la spectroscopie : l'inversion de  $\text{HNO}_3$  ACE est obtenue à partir des bandes à 870 et 1700  $\text{cm}^{-1}$  et celle de SPIRALE à partir de la bande à 1700  $\text{cm}^{-1}$  uniquement. Ces 2 régions spectrales n'ont pas été étudiées ni par les mêmes équipes, ni de la même manière. Ceci peut engendrer de grandes différences dans les profils restitués [Rothman et al., 2005]. Cette étude est incluse dans l'article de Wolff et al. [2008].

### 6.1.2.6 HCl

La molécule d'acide chlorhydrique est un réservoir important d'espèces chlorées dans la stratosphère. Elle est principalement issue de la réaction entre le méthane et un atome de chlore issu de la photolyse ou de l'oxydation des CFCs (réaction R16 de la section 2.2.3.4). L'instrument FTS utilise 22 micro-fenêtres situées entre 2700 et 3000  $\text{cm}^{-1}$  et SPIRALE utilise une bande située à 2925  $\text{cm}^{-1}$ . Les incertitudes sur la restitution de SPIRALE sont de 20% en-dessous de 16 km. Elles diminuent jusque 13% à 23 km puis sont égales à 7% au-dessus de 23 km.

Les résultats de la comparaison sont présentés sur la figure 6.8. On constate également ici sur le profil SPIRALE, une diminution du rapport de mélange entre 20 et 23 km. Elle est ici aussi attribuée au PSC détecté par STAC. Comme pour  $\text{HNO}_3$ , FTS n'est pas sensible à cette structure du fait de sa résolution verticale. Les différences relatives entre 20 et 23 km sont comprises entre 40 et 60%.



Les profils FTS et SPIRALE des rapports de mélange de HCl sont en bon accord entre 16 et 20 km et au-dessus de 23 km. Pour ces altitudes, les différences relatives sont comprises entre -2 et 27%. Généralement, le rapport de mélange de HCl déduit de la mesure de FTS surestime celui déduit de SPIRALE sauf à 24.5 km. Ces résultats ont fait l'objet d'une publication par Mahieu et al. [2008].

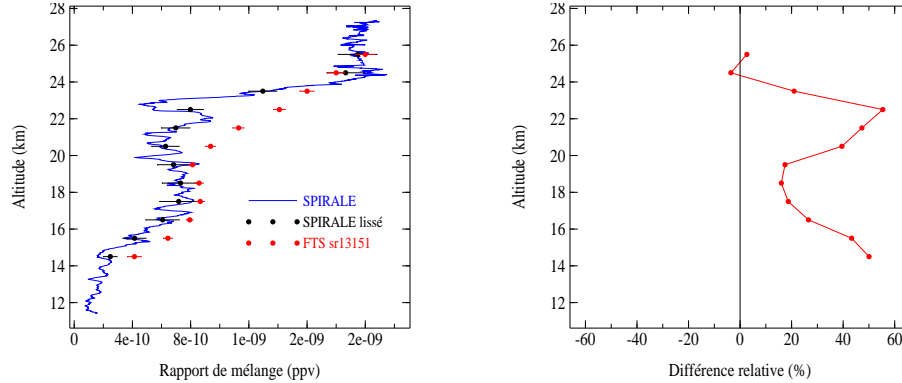


FIG. 6.8 – Identique à la figure 6.6 mais pour HCl.

#### 6.1.2.7 CH<sub>4</sub>

Le méthane est une molécule très importante à plusieurs niveaux. Il s'agit tout d'abord d'un puissant gaz à effet de serre. Il est aussi à l'origine du réservoir stratosphérique d'acide chlorhydrique. Le méthane joue ainsi un rôle non négligeable dans la chimie de l'ozone. Le méthane présent dans l'atmosphère provient principalement de sources biologiques de types marais, rizières, digestion des ruminants du fait de bactéries dites « méthanogènes » vivant dans des milieux pauvres en oxygène mais aussi des fuites de gaz naturels.

L'algorithme de l'instrument FTS utilise plusieurs micro-fenêtres entre 1245 et 1463 cm<sup>-1</sup> et entre 2610 et 2888 cm<sup>-1</sup>. SPIRALE utilise quant à lui une bande centrée à 1275 cm<sup>-1</sup>. L'incertitude sur la restitution du rapport de mélange de CH<sub>4</sub> par SPIRALE est de 5% sur toute la gamme d'altitude sondée.

Les résultats de cette comparaison sont présentés sur la figure 6.9. Les profils de rapport de mélange de CH<sub>4</sub> déduits de la mesure de SPIRALE et de celle de FTS sont en bon accord en-dessous de 24 km. Notons tout de même qu'en dessous de 19 km, les barres d'erreur des 2 instruments ne se chevauchent pas. Entre 15 et 24 km, les différences relatives sont inférieures à 10%, les valeurs de FTS étant supérieures à celles de SPIRALE sauf à 22.5 km. Au-dessus de 24 km, les différences relatives augmentent, atteignant 37% à 25.5 km. Cette étude est incluse dans l'article de De Mazière et al. [2008].

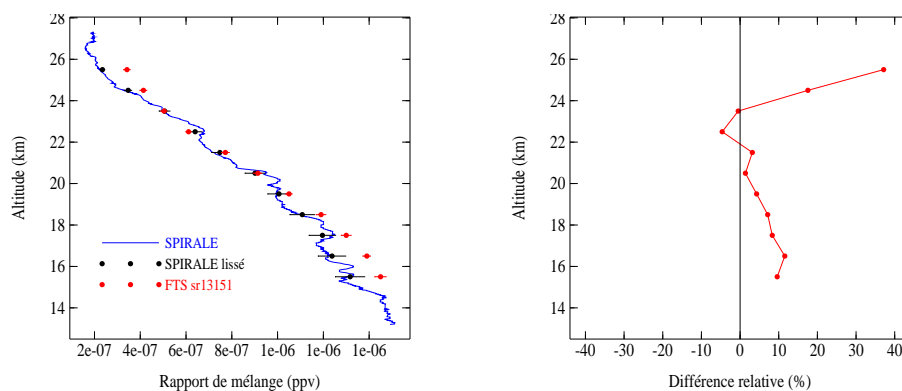


FIG. 6.9 – Identique à la figure 6.6 mais pour CH<sub>4</sub>.

### 6.1.3 SAGE III (LOA)

L'étude présentée ici est une comparaison statistique entre les profils verticaux des rapports de mélange en ozone et en dioxyde d'azote déduits des mesures de FTS et de SAGE III. Les produits SAGE III utilisés ici sont ceux issus de l'algorithme du LOA. Comme dans la section précédente, les produits NO<sub>2</sub> de FTS sont issus de l'algorithme version 2.2 et les produits O<sub>3</sub> de la version 2.2 'update'.

Les critères de coïncidences spatio-temporelles utilisés pour cette étude sont les mêmes que ceux que nous avons utilisés pour définir les coïncidences entre SAGE III/SAGE II et SAGE III/POAM III : une distance maximale de 500 km entre les points subtangents des 2 instruments et 2 heures entre les 2 mesures. Notons que, pour l'instrument FTS, le point subtangent est défini par rapport à la ligne de visée à 30 km d'altitude alors que pour SAGE III, le point subtangent est défini à 20 km. Après vérification, il apparaît que la latitude et la longitude du point subtangent de SAGE III à 20 et à 30 km ne diffèrent que de quelques dixièmes de degrés.

En appliquant ce critère, un total de 719 coïncidences a été trouvé entre février 2004 et décembre 2005. Dans l'hémisphère nord, SAGE III observe des couchers de soleil (vu de la plateforme satellitaire) et au sud, il observe uniquement des levers de soleil. Le satellite ACE observe quant à lui, coucher et lever dans les deux hémisphères. Lors d'un lever de soleil, le satellite sort de l'ombre de la Terre alors que pour un coucher, il rentre dans l'ombre de la Terre. Ainsi, les détecteurs ne sont pas à la même température selon le type d'occultation. Sachant que le comportement des détecteurs peut être différent selon sa température, nous séparerons les comparaisons selon leur type et on les nommera ACEss pour un coucher de soleil vu par ACE et ACEsr pour un lever (idem pour SAGE III). Nous avons donc trouvé 627 coïncidences du type ACEss/SIIIss, 71 coïncidences ACEss/SIIIsr, 18 coïncidences ACEsr/SIIIss et seulement 3 coïncidences ACEsr/SIIIsr. La figure 6.10 présente la distribution verticale des coïncidences. On constate que les coïncidences ACEss/SIIIss sont localisées sur 2 bandes de latitudes, l'une entre 70 et 80°N et l'autre entre 47 et 54°N. Les coïncidences ACEss/SIIIsr sont principalement localisées autour de 60°S. Les coïncidences ACEsr/SIIIss sont situées entre 46 et 55°N. Certaines coïncidences de ce dernier type ont été trouvées plus au nord, vers 85°. Enfin, les 3 coïncidences ACEsr/SIIIsr sont localisées vers 42°N. Notons que ces nombres de coïncidences varient légèrement avec l'espèce considérée (O<sub>3</sub> et NO<sub>2</sub>) et l'instrument considéré (FTS ou MAESTRO). Les valeurs présentées ci-dessus correspondent aux coïncidences FTS/SAGE

III pour l’ozone.

Nous présentons pour chaque type de coïncidence, les profils verticaux des rapports de mélange moyens de FTS et de SAGE III ainsi que les profils verticaux des moyennes des différences relatives entre ces rapports de mélange. Les différences relatives sont calculées pour chaque coïncidence selon le modèle de l’équation 6.1 en substituant la grandeur SPIRALE par celle SAGE III.

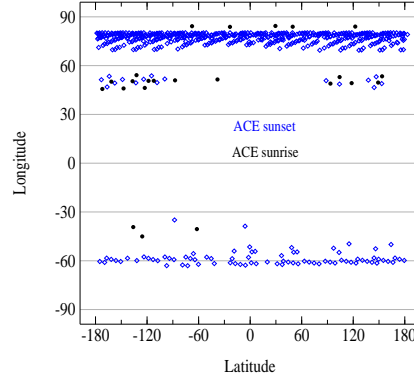


FIG. 6.10 – Distribution spatiale des coïncidences ACE/SAGEIII. Chaque diamant bleu correspond à une mesure au coucher (vu du satellite) de ACE et chaque point noir à une mesure au lever de soleil de ACE.

### 6.1.3.1 O<sub>3</sub>

Les résultats concernant l’ozone sont présentés sur la figure 6.11. Globalement, un bon accord est obtenu pour les quatre types de coïncidences.

Pour les coïncidences concernant ACEss (figures du haut), on observe un biais positif (FTSss > SIII) entre 12 et 45 km quelque soit le type d’occultation de SAGE III : les moyennes des différences relatives sont comprises entre 0 et 8% pour les coïncidences FTSss/SIIIss et entre 0 et 13% pour les coïncidences FTSss/SIIIsr. Les dispersions sur ces différences relatives moyennes sont relativement faibles, inférieures à 20% au-dessus de 15 km et entre 20 et 40% en-dessous de 15 km. Au-dessus de 45 km, les différences relatives augmentent fortement du fait de la mauvaise qualité du produit SAGE III issu de l’algorithme du LOA à ces altitudes.

Les comparaisons pour les coïncidences ACEsr/SIII sont aussi bonnes. Entre 16 et 45 km, on retrouve un biais positif pour les 3 coïncidences FTSsr/ACEsr : les différences relatives sont comprises entre 0 et 10% et les écart-types sont inférieurs à 15%. Pour les comparaisons entre ACEsr et SIIIss, les différences relatives sont en moyenne positives (de 0 à 15%) entre 12 et 32 km puis négatives (entre -8 et 0%) jusque 45 km.

En conclusion, les rapports de mélange d’ozone déduits de la mesure de FTS et de celle de SAGE III (LOA) sont en bon accord jusque 45 km. Au-dessus de cette altitude, nous obtenons en moyenne des rapports de mélange d’ozone FTS supérieurs à ceux issus de SAGE III. Notons que Dupuy et al. [2008] ont effectué la même étude mais avec le produit SAGE III issu de l’algorithme du LaRC. Ils concluent également sur un bon accord entre les 2 produits avec des différences relatives comprises en moyenne entre -6 et +6% entre

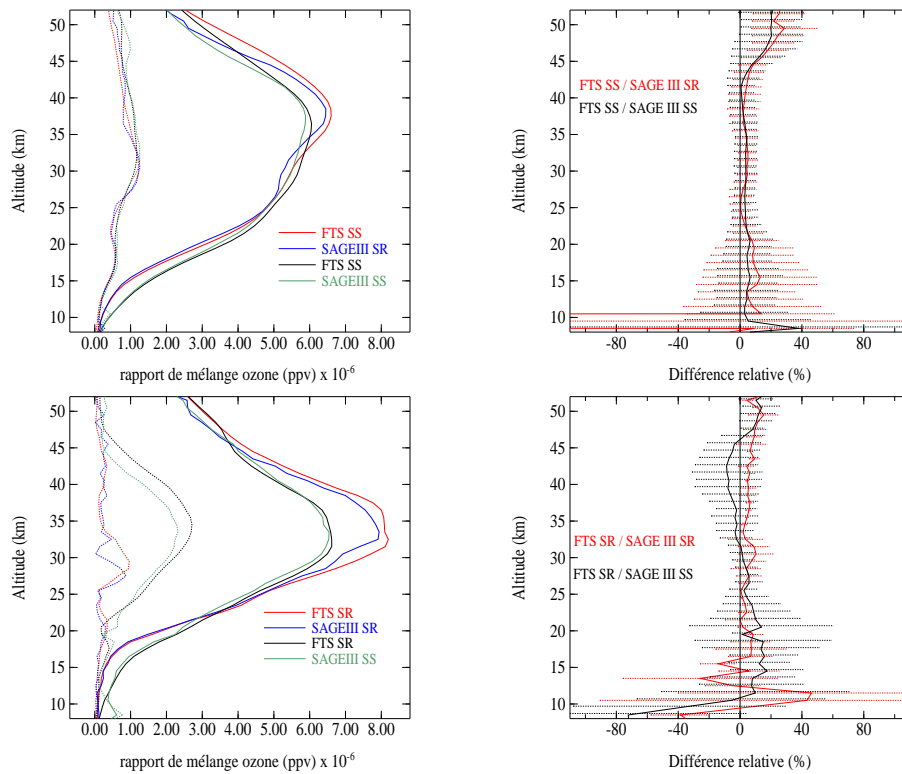


FIG. 6.11 – Profils verticaux des moyennes des rapports de mélange d’ozone pour les mesures FTS et SAGE III (LOA) en coïncidence spatio-temporelle (à gauche en trait plein) et moyenne des différences relatives (à droite). Les profils en pointillés sur les figures de gauche et les barres pointillées sur les figures de droite correspondent aux écart-types sur le calcul des moyennes. Les figures en haut correspondent aux coïncidences ACEss et celles du bas aux coïncidences ACEsr. A gauche : les profils SIIIsr (en bleu) sont associés aux profils FTS (en rouge) et les profils SIIIss (en vert) aux profils FTS (en noir). A droite : les moyennes des différences relatives FTS/SIIIsr sont en rouge et celles FTS/SIIIss en noir.

12 et 42 km. Au-dessus de 42 km, ils constatent que les rapports de mélange d’ozone FTS sont en moyenne supérieurs à ceux issus de SAGE III (10 à 20%).

### 6.1.3.2 NO<sub>2</sub>

Les résultats concernant les comparaisons entre les rapports de mélange en dioxyde d’azote sont présentés sur la figure 6.12.

Concernant les coïncidences FTSss/SIIIss, on constate un biais négatif (FTSss < SIIIss) entre 15 et 40 km : les différences relatives sont, en moyenne, de l’ordre de -15 à -10% avec des écart-types relativement importants, compris entre 15 et 40%. Au-dessus de 40 km, les différences relatives sont en moyenne positives avec des dispersions très grandes (supérieures à 50%). Les comparaisons entre les événements de type FTSss et SIIIsr sont en moyenne bonnes entre 16 et 27 km (différences relatives comprises entre -2 et 10%) mais, les dispersions sont très grandes : elles sont comprises entre 45 et 100%. Entre 27 et 40 km, on constate un biais négatif (de l’ordre de -20%) avec des écart-types entre 20 et 60%. Au-dessus de 40 km, on observe des différences relatives allant de -35 à 80%.

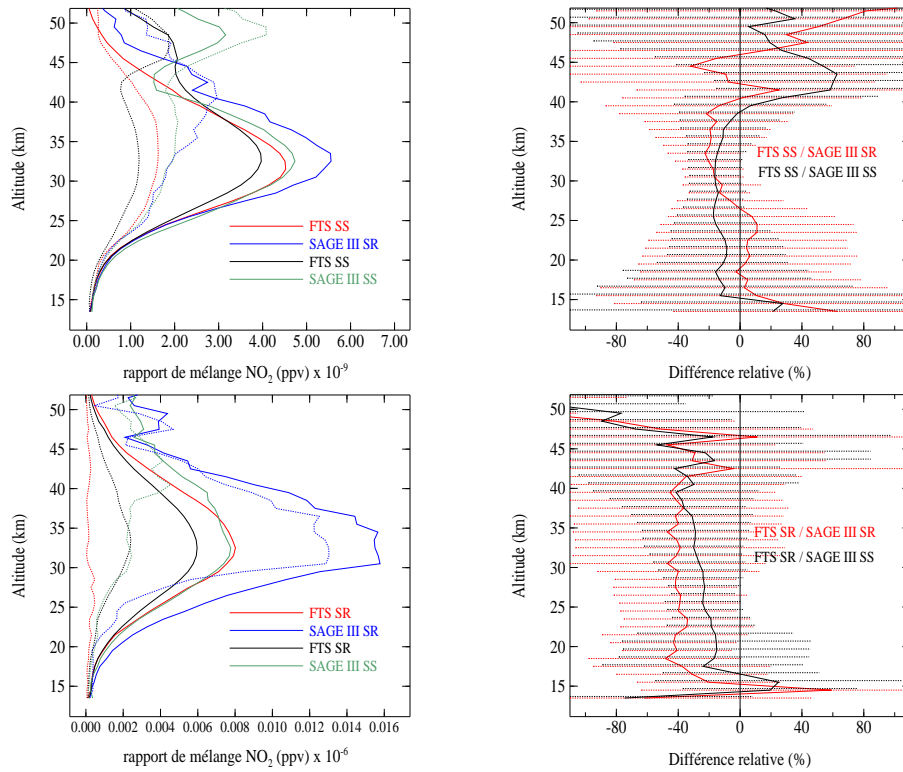


FIG. 6.12 – Identique à la figure 6.11 mais pour le dioxyde d'azote.

Pour les 3 coïncidences FTSsr/SIIIsr, un biais négatif de l'ordre de -40% est constaté entre 18 et 40 km, les dispersions étant relativement importantes (de 30 à 60%). Un biais négatif est également constaté pour les coïncidences FTSsr/SIIIss entre 17 et 40 km : en moyenne, les différences relatives sont comprises entre -40 et -20% avec des dispersions entre 30 et 60%.

En conclusion, les rapports de mélange de  $\text{NO}_2$  SAGE III (LOA) surestiment ceux déduits de la mesure de FTS entre 18 et 40 km pour les coïncidences FTSss/SIIIss, FTSsr/SIIIsr et FTSsr/SIIIss. Un comportement moyen différent est observé pour les coïncidences FTSss/SIIIsr : les différences relatives ne sont négatives qu'au dessus de 27 km. Dans l'article de Kerzenmacher et al. [2008], la même étude est effectuée avec le produit officiel de SAGE III sans distinguer le type d'occultation observé (lever ou coucher de soleil par rapport au satellite). Ils constatent également une surestimation de FTS de l'ordre de -15% entre 14 et 40 km.

## 6.2 ACE-MAESTRO

### 6.2.1 Introduction

Rappelons que MAESTRO comprend deux spectromètres : l'un couvrant une gamme spectrale allant de 285 à 565 nm (résolution de 1.5 nm) et le second de 515 à 1015 nm (résolution spectrale de 2 nm). On les nommera par la suite respectivement spectromètre UV et VIS. La procédure d'inversion consiste en deux étapes. Tout d'abord, les données brutes sont corrigées de divers effets (lumière parasite, variabilité du temps d'intégration de chaque pixel,...) puis converties en spectres calibrés en longueur d'onde (en utilisant les raies de Fraunhofer). Pour déterminer les concentrations de l'ozone et du dioxyde d'azote à partir de ces spectres, un code d'ajustement spectral utilisant un moindre carré non linéaire est utilisé pour ajuster des épaisseurs optiques tangentes modélisées à celles observées pendant une occultation. Les sections efficaces de l'ozone et du dioxyde d'azote utilisées sont celles de GOME à 202 K (pour O<sub>3</sub>) et 221 K (pour NO<sub>2</sub>) [Burrows et al., 1999, 1998]. Les profils verticaux sont ensuite obtenus en utilisant une méthode de relaxation non linéaire [Chahine, 1972]. Comme pour FTS, les produits sont fournis sur deux grilles : la grille tangente et une grille interpolée tous les 0.5 km. Les rapports de mélange sont obtenus en utilisant les profils de température et de pression déduits de la mesure de FTS. Pour plus de détails concernant cet algorithme, se référer à l'article de McElroy et al. [2007].

Nous utiliserons dans cette partie les produits MAESTRO version 1.2. Deux produits 'ozone' sont disponibles : on les nommera ozoneUV et ozoneVIS pour le produit du spectromètre UV et VIS respectivement. Un seul produit NO<sub>2</sub> est disponible, il est issu du spectromètre UV. Notons que MAESTRO et FTS partage le même champ de vue. Ainsi, ces deux instruments sondent simultanément les mêmes masses d'air mais avec des résolutions verticales différentes : de 1 à 2 km pour MAESTRO et inférieures à 3 - 4 km pour FTS. Les figures 6.13 montrent les profils verticaux des rapports de mélange d'ozone et de dioxyde d'azote FTS et MAESTRO pour 2 événements choisis aléatoirement.

Nous constatons que les profils d'ozone des deux spectromètres de MAESTRO sont plus proches en-dessous de 30 km qu'au-dessus. De plus, en-dessous de cette altitude, les deux profils sont assez proches du profil FTS, les profils du spectromètre visible étant toutefois plus proches des profils FTS. Au-dessus de cette altitude, les profils d'ozone UV diffèrent fortement des deux autres. Pour ces deux événements, les profils des rapports de mélange en dioxyde d'azote des 2 instruments sont en bon accord. Ces quelques comparaisons nous donnent un aperçu de la cohérence des données des deux spectromètres. Une étude complète a été réalisée par Kar et al. [2007]. Cette étude a montré que les profils des rapports de mélange en ozone des 2 spectromètres sont en bon accord sur la gamme d'altitude où les données UV ont un bon rapport signal sur bruit ( $\sim 15 - 30$  km). Pour les rapports de mélange en ozone de FTS et MAESTROvis, ils constatèrent en moyenne, un accord de 5% entre 16 et 50 km pour les événements SS et entre 22 et 42 km pour les événements SR. Pour le dioxyde d'azote, l'accord moyen est de l'ordre de 10 à 15% entre 15 et 46 km pour les événements SR et entre 22 et 40 km pour les événements SS. Cette section présente les comparaisons effectuées à l'aide de SPIRALE et SAGE III (LOA).

## OZONE

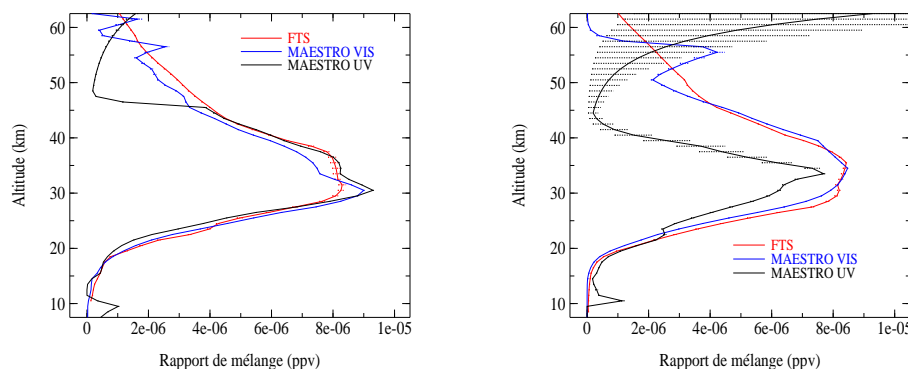
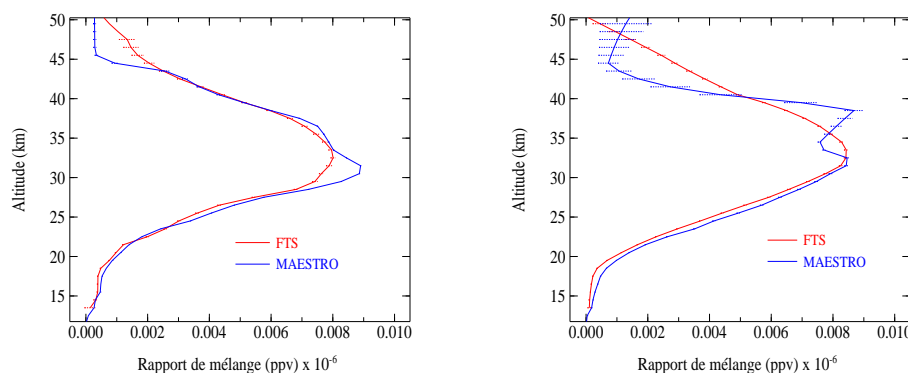
NO<sub>2</sub>

FIG. 6.13 – Profils verticaux des rapports de mélange en ozone (les 2 figures du haut) et en dioxyde d’azote (les 2 figures du bas) pour 2 événements choisis aléatoirement. Pour l’ozone, en rouge : FTS, en bleu : MAESTROvis et en noir : MAESTROuv. Pour NO<sub>2</sub>, en rouge : FTS et en bleu : MAESTRO.

## 6.2.2 SPIRALE

Nous utilisons également ici la mesure de SPIRALE effectuée le 20 janvier 2006 au départ de la base de Kiruna et celle de MAESTRO du 21 janvier 2006. Les spécificités de ce vol sont décrites dans la section 6.1.2. Afin de prendre en compte les différences de résolutions verticales des 2 instruments, les profils SPIRALE sont convolués avec une fonction gaussienne de largeur à mi-hauteur égale à 1.7 km. Cette valeur correspond à la meilleure résolution verticale de MAESTRO.

### 6.2.2.1 O<sub>3</sub>

Les résultats de la comparaison entre SPIRALE et MAESTRO pour les rapports de mélange en ozone sont présentés sur la figure 6.14. Seules les comparaison avec le spectromètre visible sont présentés ici. En effet, on a constaté que, sur la gamme d’altitude étudiée ici (de 14 à 28 km), les rapports de mélange en ozone du profil spectromètre UV sont de l’ordre de  $10^{-12}$  à  $10^{-9}$  ppv alors que pour les spectromètres VIS et pour SPIRALE, les rapports de mélange sont de l’ordre de quelque  $10^{-7}$  ppv.

Un très bon accord est obtenu entre les 2 profils : les différences relatives sont comprises entre -7 et +5% sur la gamme d'altitude étudiée. Ce résultat est inclus dans l'article de Dupuy et al. [2008].

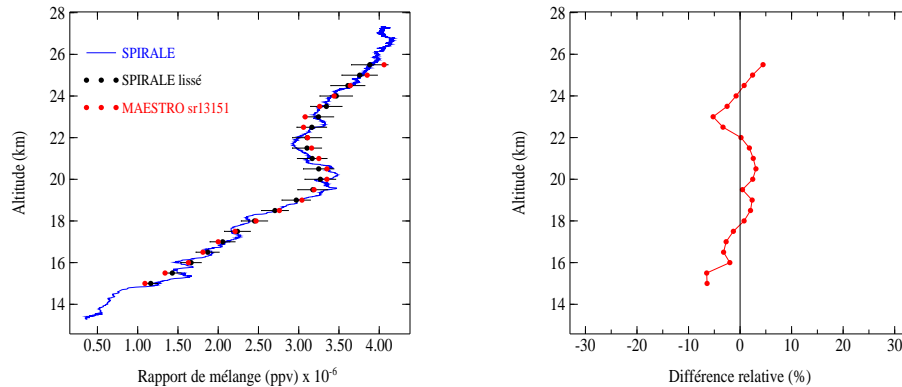


FIG. 6.14 – Identique à la figure 6.4 mais pour les comparaisons SPIRALE / MAESTRO-vis.

### 6.2.2.2 NO<sub>2</sub>

La comparaison entre le profil du rapport de mélange en dioxyde d'azote de SPIRALE et de MAESTRO est présentée sur la figure 6.15. Comme pour FTS, la dénoxyfication observée par SPIRALE en-dessous de 24 km n'est pas détectée par MAESTRO : les différences relatives sont comprises entre 60 et 140%. La correction apportée sur la mesure MAESTRO pour tenir compte des 14 heures de décalage entre les 2 mesures n'améliore pas la comparaison ; après correction, les différences relatives sont comprises entre 120 et 170%. Au-dessus de 24 km, les rapports de mélange augmentent pour les 2 instruments. Les différences relatives sont alors comprises entre -14 et -45% sans la correction et entre 40 et 60% avec la correction. La raison de ce désaccord a déjà été expliquée dans le paragraphe 6.1.2.3 : l'hypothèse d'homogénéité sphérique utilisée dans l'algorithme d'inversion de MAESTRO génère dans ce cas (ligne de visée traversant à haute altitude des régions à l'intérieur et à l'extérieur du vortex) des concentrations en NO<sub>2</sub> non nulles dans la basse stratosphère. Ces résultats sont inclus dans l'article de Kerzenmacher et al. [2008].

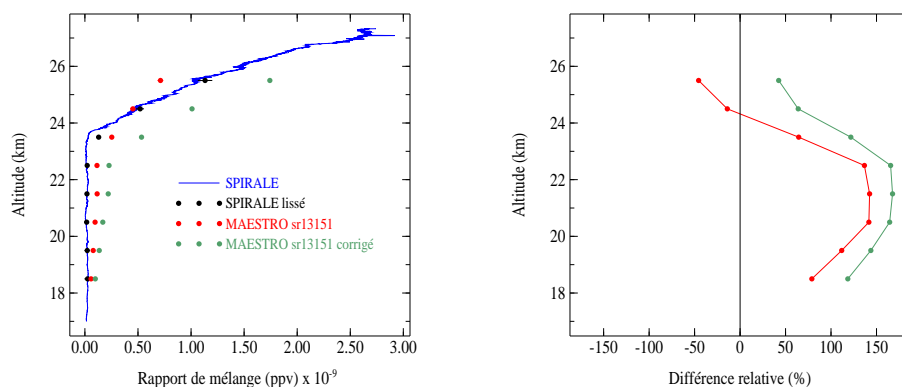


FIG. 6.15 – Identique à la figure 6.5 mais pour la comparaison SPIRALE / MAESTRO.



### 6.2.3 SAGE III (LOA)

Nous présentons ici une étude comparative statistique entre les profils verticaux des rapports de mélange en ozone et en dioxyde d'azote de MAESTRO et SAGE III (LOA). Le critère de coïncidence spatio-temporel est le même que celui utilisé pour les comparaisons effectuées entre SAGE III et FTS (500 km et 2h). Nous effectuerons également la distinction entre les événements MAESTRO effectués lors d'un coucher de soleil et lors d'un lever de soleil (vu du satellite). Nous les noterons respectivement MAEss et MAEsr. Nous présentons dans ce chapitre les profils moyens des rapports de mélange obtenus pour chaque ensemble de coïncidences ainsi que les profils verticaux des moyennes des différences relatives. Les différences relatives sont calculées à chaque altitude suivant le modèle de l'équation 6.1.

#### 6.2.3.1 O<sub>3</sub>

Nous présentons les comparaisons effectuées avec le spectromètre VIS de MAESTRO. Nous avons trouvé 593 coïncidences MAEss/SIIIss, 70 coïncidences MAEss/SIIIsr, 15 coïncidences MAEsr/SIIIss et 3 coïncidences MAEsr/SIIIsr. Les figures 6.16 présentent ces comparaisons. Pour les coïncidences MAEss/SIIIss et MAEss/SIIIsr, les rapports de mélange des 2 instruments sont en très bon accord entre 12 et 45 km : les différences relatives sont comprises entre -5 et +5% avec de faibles écart-types (de l'ordre de 5 à 10%).

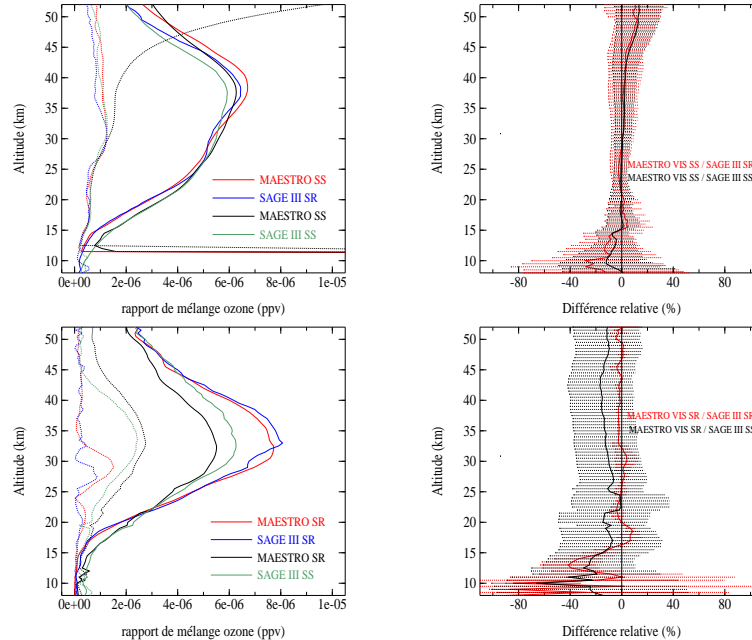


FIG. 6.16 – Identique à la figure 6.11 mais pour le spectromètre VIS de MAESTRO.

En ce qui concerne les 3 coïncidences MAEsr/SIIIsr, les rapports de mélange en ozone sont en très bon accord entre 15 et 50 km : les différences relatives sont de l'ordre de -5 à +5% avec des dispersions comprises entre 0.5 et 10%. En-dessous de 15 km, les différences relatives sont négatives (MAEsr < SIIIsr). Pour les coïncidences MAEsr/SIIIss,

on constate un biais négatif au-dessus de 25 km : les moyennes des différences relatives sont de l'ordre de -10% avec des écart-types entre 25 et 35%. Les rapports de mélange d'ozone des événements MAEsr sous-estime les rapports de mélange SIIIss. En-dessous de 25 km, les différences relatives sont aussi négatives, comprises entre -70 et -0.4%.

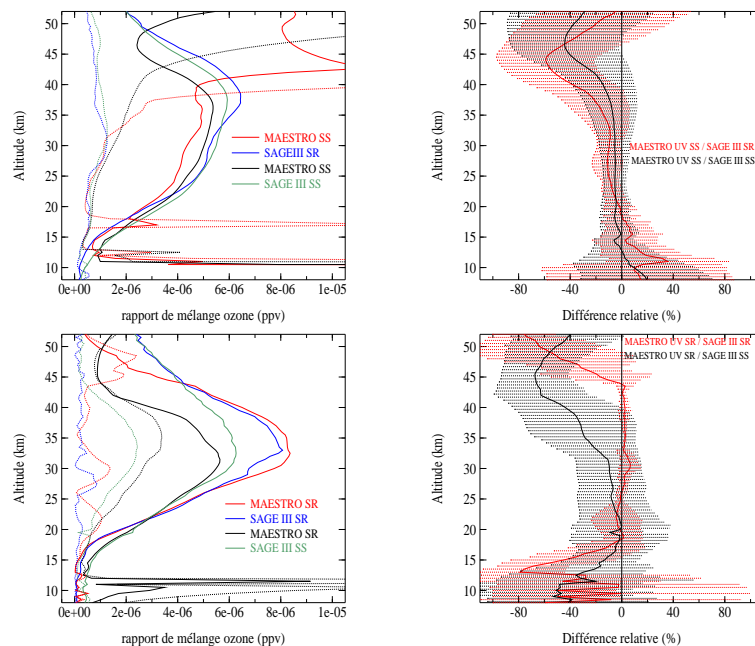


FIG. 6.17 – Identique à la figure 6.11 mais pour le spectromètre UV de MAESTRO.

Analysons maintenant les comparaisons entre les rapports de mélange en ozone déduits des mesures SAGE III et du spectromètre UV de MAESTRO. Ces comparaisons sont présentées sur les figures 6.17. Les profils moyens MAEsr (figures en haut à gauche) présentent un comportement inhabituel au-dessus de 40 km. En effet, les augmentations des rapports de mélange observées à partir de 40 et 45 km ne correspondent pas à ce qui est habituellement observé : en effet, au-dessus de 40 km, le rapport de mélange en ozone est plutôt décroissant. De plus, les dispersions pour les profils moyens MAEsr à ces altitudes deviennent très grandes. Cela est imputable au rapport signal sur bruit à ces altitudes qui est assez faible. Ainsi, les rapports de mélange en ozone de MAESTRO UV ne sont à considérer qu'en dessous de 40 km (Kar et al. [2007] limitent eux les profils verticaux à 30 km). Entre 15 et 40 km, les différences relatives pour les coïncidences MAEsr/SIIIss sont en moyenne comprises entre -10 et 0% et pour les coïncidences MAEsr/SIIIsr entre -30 et 6%. On constate ainsi qu'en moyenne, les rapports de mélange en ozone MAEsr sous-estiment ceux de SIIIss au-dessus de 13 km et SIII sr au-dessus de 17 km.

Pour les 3 coïncidences MAEsr/SIIIsr, les rapports de mélange sont en bon accord entre 18 et 44 km : les différences relatives sont en moyenne comprises entre -5 et 7% avec des écart-types entre 1 et 15%. Au-dessus de 44 km, les différences relatives augmentent fortement en valeurs absolues atteignant -60% vers 50 km. En ce qui concerne les coïncidences MAEsr/SIIIss, les différences relatives sont négatives sur toute la gamme d'altitude étudiée, elles sont comprises entre -60 et -1% avec des dispersions allant de 20 à 50%. On constate également que le rapport de mélange moyen MAEsr correspondant à SIIIss augmente à partir de 45 km. Le meilleur accord est obtenu entre 14 et 33 km : les différences relatives sont entre -20 et -0.5% mais avec des dispersions comprises entre 25 et 45 %.

### 6.2.3.2 NO<sub>2</sub>

Nous présentons maintenant les comparaisons entre les rapports de mélange en NO<sub>2</sub> de MAESTRO (spectromètre UV) et ceux de SAGE III (LOA). Ces résultats sont présentés sur la figure 6.18. Pour les coïncidences MAEss/SIIIsr, on constate des différences relatives comprises entre -20 et +20% entre 20 et 40 km avec des dispersions de l'ordre de 15 à 40%. Les différences relatives sont en moyenne positives (MAEss > SIIIsr) en dessous de 28 km et négatives au-dessus. Les écart-types de la moyenne des rapports de mélange MAEss augmentent fortement à partir de 37 km. A partir de cette altitude, les rapports de mélange MAEss stagnent puis augmentent à partir de 40 km et diminuent à 43 km. Pour les coïncidences MAEss/SAGEIIIss, les différences relatives sont en moyenne entre -20 et 20% entre 16 et 42 km. A ces niveaux, les écart-types sont compris entre 9 et 40%. En-dessous de 24 km, les différences relatives moyennes sont positives (MAEss > SIIIsr). Elles sont négatives au-dessus de 24 km et positives au-delà de 40 km. Les 3 coïncidences du type MAEsr/SIIIsr sont en désaccord. On constate un biais de l'ordre de -20% entre 18 et 40 km avec des dispersions de 20 à 35%. Les rapports de mélange issus des mesures de MAEsr sous-estiment ceux issus de SIIIsr. Pour les coïncidences MAEsr/SIIIsr, on constate également ce biais négatif entre 17 et 40 km : les différences relatives sont entre -30 et -10%. Les rapports de mélange issus des mesures de MAEsr sous-estiment également ceux issus de SIIIsr.

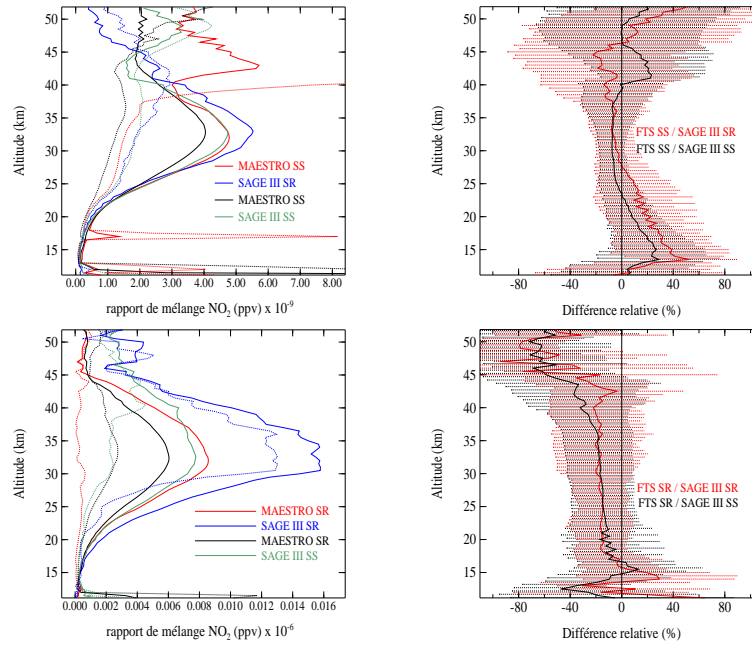


FIG. 6.18 – Identique à la figure 6.12 mais pour MAESTRO.

## 6.3 ACE-Imager

### 6.3.1 Introduction

Les 2 imageurs, inclus sur la plateforme satellitaire ACE, enregistrent des images du soleil à 525 nm et à 1020 nm. Par souci de simplification, on qualifiera ces deux imageurs de VIS pour l'imageur à 525 nm et NIR pour l'imageur à 1020 nm. Ces instruments sont décrits plus en détails dans l'article de Gilbert et al. [2007]. Un algorithme décrit dans ce même article permet, à partir de ces images, de générer des profils verticaux d'extinction atmosphérique à ces 2 longueurs d'onde. Nous résumons ici l'essentiel de cet algorithme. Le rayonnement incident traverse tout d'abord un filtre atténuateur neutre (pour éviter la saturation des détecteurs lors des mesures hors atmosphère) puis est divisé en deux faisceaux dirigés chacun vers un imageur. Les imageurs enregistrent alors une image du soleil de  $256 \times 256$  pixels. Après analyse, l'image est réduite à  $64 \times 64$  pixels. Durant une occultation, une telle image est ainsi enregistrée toutes les 0.25 seconde. Le rapport signal sur bruit est très bon (de l'ordre de 1500 pour une image du soleil sans atténuation).

Certains problèmes affectent les imageurs :

- le 'dark current'. Il s'agit de la faible réponse des détecteurs en l'absence de rayonnement incident.
- Une augmentation linéaire anormale de la réponse des détecteurs qui a lieu lors d'une occultation. Ce problème affecte plus l'imageur NIR que l'imageur VIS. Une correction est appliquée pour pallier ce problème, cependant la précision de cette correction est incertaine.
- Des images multiples causées par des réflexions sur le filtre atténuateur se forment sur les détecteurs.
- Le système de mise au point de l'imageur NIR cause des images floues. La raison de ce problème de mise au point n'est pas connue.

Les images sont corrigées du 'dark current', des images multiples et de l'augmentation anormale de la réponse des détecteurs. Le rapport entre les images obtenues à chaque altitude tangente et l'image de référence fournit alors les profils verticaux des transmissions atmosphériques le long des lignes de visée. Une inversion spatiale est alors appliquée pour produire les profils verticaux des coefficients d'extinction total.

Nous utilisons dans cette étude, les données de l'imageur version 2.2. Actuellement, aucun produit aérosol officiel n'est disponible. Nous avons ainsi calculé les profils verticaux des coefficients d'extinction des aérosols dans les deux canaux. L'extinction du rayonnement est causée par la diffusion moléculaire, l'absorption de l'ozone (principalement dans le canal visible) et du dioxyde d'azote (uniquement dans le canal visible). Les coefficients d'absorption de l'ozone et du dioxyde d'azote sont calculés à partir des rapports de mélange de ACE-FTS et des sections efficaces mesurées par l'instrument SCIAMACHY [Bogumil et al., 2003]. Le coefficient de diffusion moléculaire est quant à lui calculé à partir des sections efficaces de diffusion moléculaires de l'article de Bodhaine et al. [1999] et des profils de température et de pression déduits des mesures de FTS. Pour tenir compte de la largeur spectrale des imageurs, les sections efficaces ont été convoluées par les fonctions filtres de ces imageurs. Les coefficients d'extinction des aérosols sont alors obtenus simplement en soustrayant les coefficients d'absorption de  $O_3$  et de  $NO_2$  et le coefficient de diffusion moléculaire aux coefficients d'extinction totaux.

Nous présentons ici l'étude de validation des coefficients d'extinction des aérosols des

imageurs effectuée avec les mesures coïncidentes des instruments SAGE II et SAGE III. Nous utilisons ici les produits SAGE III officiels car l'équipe scientifique en charge des imageurs nous l'a demandé. Les différences relatives sont calculées à chaque altitude selon l'équation suivante :

$$DIFF(z) = 200 * \frac{aer^{IMA} - aer^{SAGE}}{aer^{IMA} + aer^{SAGE}} \quad (6.3)$$

où  $aer^{IMA}$  correspond au coefficient d'extinction des aérosols des imageurs et  $aer^{SAGE}$  celui de SAGE II ou SAGE III. Notons que, pour le calcul des moyennes, nous avons dû appliquer un filtrage afin d'éliminer les outliers : après un premier calcul de la moyenne ( $\bar{X}$ ) et de l'écart-type ET, nous n'avons gardé que les valeurs (différences relatives ou coefficient d'extinction) incluses dans l'intervalle  $[\bar{X} - 3ET; \bar{X} + 3ET]$  pour une nouvelle estimation des moyennes et des écart-types. Nous gardons ce faisant près de 98% des valeurs de départ. Ainsi, les moyennes et écart-types calculés ne sont pas influencés par les quelques valeurs particulières trop grandes ou trop faibles par rapport à la première moyenne calculée.

Le critère de coïncidence choisi pour cette étude est : 400 km entre les deux points subtangents et 2h entre les deux mesures. Nous avons étudié les deux hémisphères séparément. Cette étude a été intégrée à l'article de Vanhellemont et al. [2008].

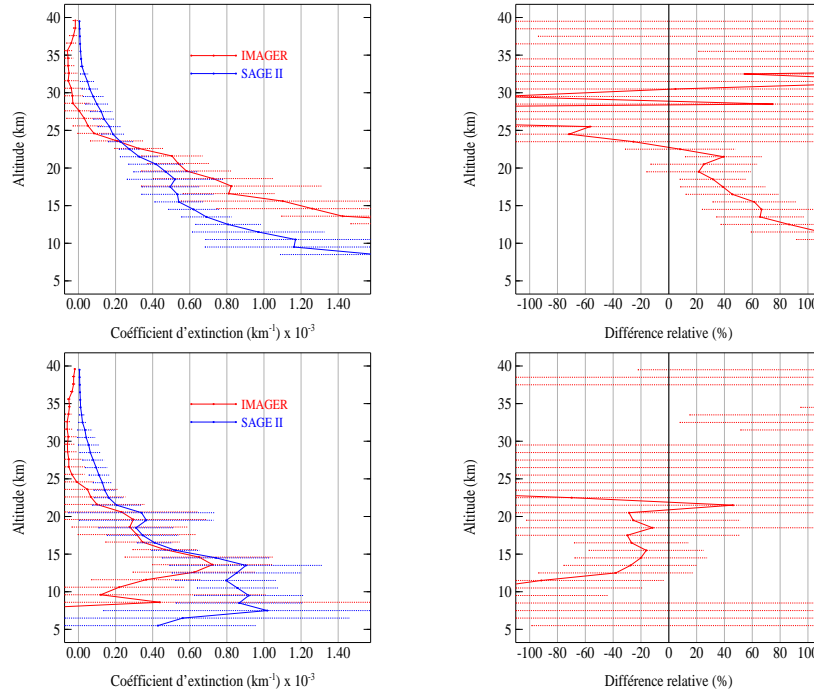
### 6.3.2 SAGE II

128 coïncidences respectant le critère spatio-temporel choisi ont été trouvées entre février 2004 et septembre 2005 : 42 dans le nord et 86 dans le sud. Dans l'hémisphère nord, elles sont réparties entre 10 et 65° de latitude. Dans l'hémisphère sud, elles sont situées autour de 70° et autour de 20° sud. Les produits SAGE II version 6.2 sont utilisés. Les coefficients d'extinction SAGE II fournis sont aux même longueurs d'onde que celle des imageurs. Les résultats des comparaisons faites sur les coïncidences SAGE II / Imager sont présentés sur la figure 6.19.

A 525 nm, on observe systématiquement des coefficients d'extinction moyens de l'imageur VIS négatifs au-dessus de 25 km. En-dessous de cette altitude, les deux instruments couvrent la même gamme de coefficient d'extinction si on tient compte des barres de dispersion. Dans l'hémisphère sud, les moyennes des coefficients d'extinction à 525 nm de SAGE II sont supérieures à celles de l'imageur VIS sur toute la gamme d'altitude étudiée. Au nord, on constate que le coefficient d'extinction moyen de l'imageur VIS est supérieur à celui de SAGE II en dessous de 22 km puis inférieur au-dessus. Ces dernières constatations sont valables également sur les profils des différences relatives moyennes : en-dessous de 20-22 km, les moyennes des différences relatives sont positives au nord et négative au sud.

A 1020 nm, les profils moyens des deux instruments sont similaires sur toute la gamme d'altitude étudiée. Le coefficient d'extinction de l'imageur est systématiquement supérieur à celui de SAGE II. Au nord, les moyennes des différences relatives sont de l'ordre de 20 à 40% entre 10 et 25 km. Au-dessus de cette altitude, les différences relatives augmentent de 60 à 100% avec une valeur négative vers 27 km. Dans l'hémisphère sud, les différences relatives sont en moyenne comprises entre 0 et 20% entre 7 et 15 km. Au-dessus de 15 km, elles augmentent : elles sont comprises entre 20 et 100%.

## canaux visibles



## canaux infrarouges

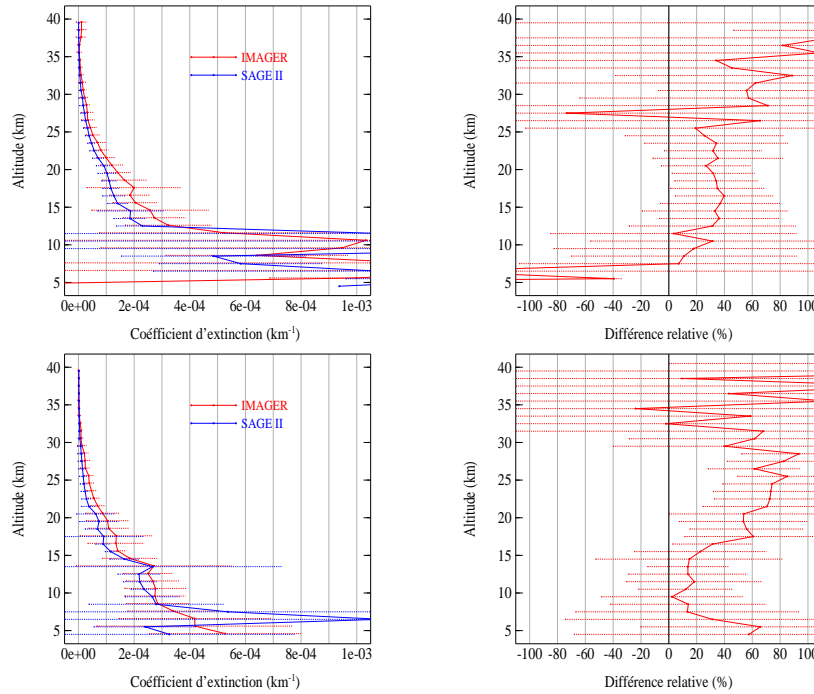


FIG. 6.19 – Profils verticaux des moyennes des coefficients d'extinction des aérosols (à gauche) dans les canaux visible et infrarouge de ACE-Imager (en rouge) et de SAGE II (en bleu). A droite : profils verticaux des moyennes des différences relatives. Première ligne : canaux visible, hémisphère nord. Deuxième ligne : canaux visible, hémisphère sud. Troisième ligne : canaux infrarouge, hémisphère nord. Quatrième ligne : canaux infrarouge, hémisphère sud. Les barres représentent les écart-types de chaque moyenne.

### 6.3.3 SAGE III (LaRC)

La comparaison entre les coefficients d'extinction des imageurs et ceux de SAGE III a été effectuée avec les produits aérosols SAGE III officiels, version 4. Les coefficients d'extinction des aérosols utilisés sont à 520.3 nm et 1022.1 nm. La différence induite par les différences de longueurs d'onde de SAGE III et des imageurs peut raisonnablement être considérée comme négligeable. Les coïncidences ont été recherchées entre février 2004 et décembre 2005. Un total de 593 coïncidences a été trouvé : 538 dans l'hémisphère nord et 55 au sud. Les coïncidences trouvées au sud se trouvent principalement vers 60° sud et celles au nord vers 80° nord et 55° nord. Par conséquent, un critère écartant les comparaisons impliquant d'éventuels PSC au nord a été mis en place : les événements d'hiver dont la latitude est supérieure à 70° et dont la température est inférieure à 198 K ne sont pas considérés. En effet, les lignes de visée pour les 2 mesures étant différentes, elles ne 'traversent' pas le nuage avec la même géométrie (ou même, l'une peut le traverser et pas l'autre) et par conséquent, l'extinction du rayonnement le long des 2 lignes de visée diffèrent.

Les figures 6.20 montrent les résultats de ces comparaisons. A 525 nm, nous constatons également des valeurs négatives pour l'imageur VIS au-dessus de 25 km. En-dessous de cette altitude, on observe un accord raisonnable entre les deux instruments : les différences relatives sont de l'ordre de -20 à 20% entre 10 et 20 km au nord et de 10 à 40% entre 10 et 23 km au sud.

A 1020 nm, on constate que les profils de l'imageur sont systématiquement supérieurs à ceux de SAGE III : les différences relatives sont en moyenne de l'ordre de 40 à 80% dans l'hémisphère nord et de 30 à 60% entre 10 et 22 km dans l'hémisphère sud.

### 6.3.4 Interprétations

Il est important de noter ici que l'algorithme officiel utilisé pour obtenir les profils verticaux d'extinction totale est encore à une étape préliminaire.

Le coefficient d'extinction de l'imageur NIR surestime en moyenne ceux de SAGE II et de SAGE III. Les différents problèmes affectant ce détecteur (augmentation linéaire de la réponse du détecteur, problème de mise au point) peuvent être la cause des différences observées.

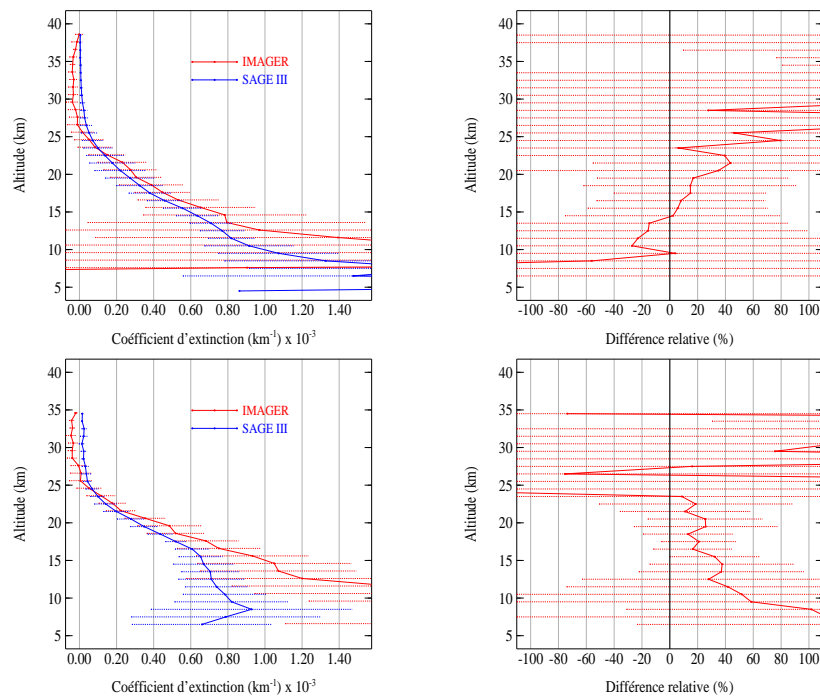
Pour le canal visible, on constate, au dessus de 25 km un décalage du coefficient d'extinction moyen de l'imageur de l'ordre de  $4.10^{-5}$  à  $8.10^{-5} \text{ km}^{-1}$  par rapport à SAGE II et SAGE III, soit  $6.10^{-5} \text{ km}^{-1}$  en moyenne. Par conséquent, le coefficient d'extinction total mesuré par l'imageur est en moyenne affecté par ce décalage négatif. On peut attribuer ce décalage à de la lumière parasite. Si on excepte toute autre source d'erreurs,  $k_{mes}^{ext} = k_{vrai}^{ext} - 6.10^{-5}$ . Ainsi, la transmission à une altitude tangente  $z_t$  s'écrit :

$$T_{mes} = \exp \left( - \int g(z_t, s) k_{mes}^{ext} ds \right) \quad (6.4)$$

$$= \exp \left( - \int g(z_t, s) (k_{vrai}^{ext} - a) ds \right) \quad (6.5)$$

$$= T_{vrai} \exp \left( a \int g(z_t, s) ds \right) \quad (6.6)$$

## canaux visibles



## canaux infrarouges

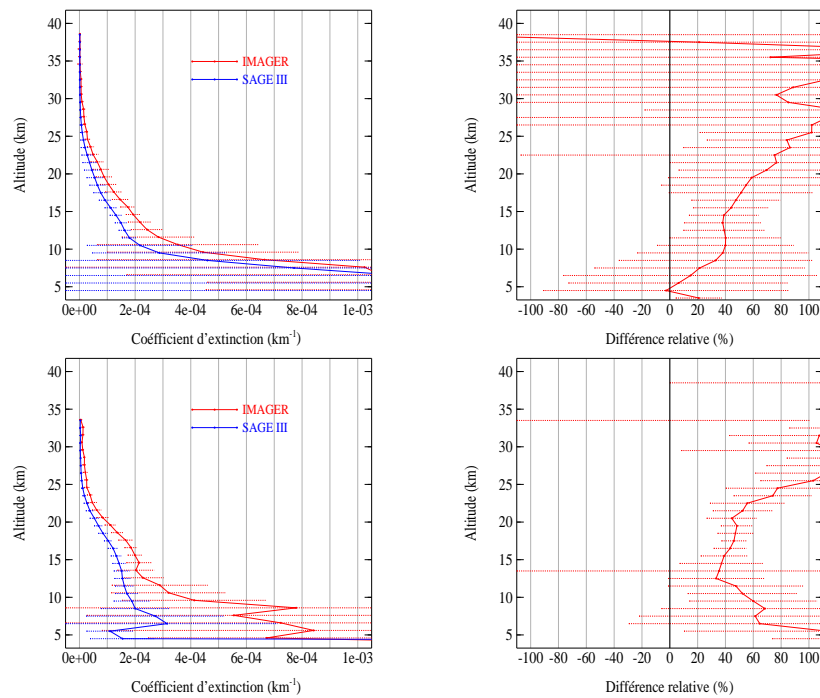


FIG. 6.20 – Identique à la figure 6.19 mais pour ACE-Imager et SAGE III.



où  $a$  est le décalage observé ( $=6.10^{-5} \text{ km}^{-1}$ ) et  $g(z_t, s)$  est la longueur du trajet du rayonnement dans un segment  $ds$ . L'intégrale sur la ligne de visée donne alors le trajet parcouru par la lumière à travers l'atmosphère. Ce trajet est calculé à partir de considérations géométriques et des lois de Snell-Descartes. A 33 km par exemple, ce trajet vaut approximativement 1800 km, soit :

$$T_{mes} \simeq T_{vrai} \exp(0.1) = T_{vrai} (1 + 0.1) \quad (6.7)$$

Ainsi, 10% de lumière supplémentaire liée aux réflexions sur le filtre atténuateur pourrait expliquer le décalage négatif observé. Il faut ajouter à cela les incertitudes liées aux différents problèmes affectant l'imageur visible. Gilbert et al. [2007] ont estimé cet apport de lumière parasite à 5-8%. Il est important de noter que les mesures au sol nécessaires à la détermination de l'intensité, de l'orientation et de la position des images multiples n'ont pu être effectuées du fait de restrictions budgétaires.

## 6.4 Conclusions

Ce chapitre résume les contributions apportées lors de ma thèse à l'exercice de validation des produits des instruments de ACE.

Différentes espèces gazeuses déduites des mesures de l'instrument FTS ont été comparées aux mesures in situ de l'instrument SPIRALE et aux mesures de SAGE III (LOA) en coïncidence spatio-temporelle. Nous résumons ci-dessous les résultats de ces comparaisons :

	SIIIss (LOA)	SIIIsr (LOA)	SPIRALE
<b>FTSss</b>	+++	+++	ND
<b>FTSsr</b>	+++	+++	+++
<b>MAESTROss VIS</b>	+++	+++	ND
<b>MAESTROsr VIS</b>	+	+++	+++
<b>MAESTROss UV</b>	+++ $z < 40 \text{ km}$	+++ $z < 40 \text{ km}$	ND
<b>MAESTROsr UV</b>	++ $18 < z < 32 \text{ km}$	+++ $13 < z < 45 \text{ km}$	ND

TAB. 6.1 – Résumé des comparaisons effectuées entre les produits ozone issus des mesures des instruments FTS et MAESTRO (VIS et UV) et ceux issus des mesures de SAGE III (LOA) et de SPIRALE. Les comparaisons entre instruments satellitaires sont séparées selon le type d'observation effectué (ss=coucher et sr=lever de soleil). Le nombre de + traduit l'importance de l'accord entre les 2 produits. ND signifie que le produit concerné n'existe pas ou n'est pas disponible.

Les rapports de mélange d'ozone des instruments de ACE, SAGE II, SAGE III et SPIRALE sont en très bon accord.

Globalement, les rapports de mélange de dioxyde d'azote issus des instruments FTS et MAESTRO ne sont pas en bon accord avec les données SAGE III et SPIRALE (sauf pour

	SIII <sub>ss</sub> (LOA)	SIII <sub>sr</sub> (LOA)	SPIRALE
<b>FTS<sub>ss</sub></b>	—	—	ND
<b>FTS<sub>sr</sub></b>	— —	— —	—
<b>MAESTRO<sub>ss</sub></b>	+	+	ND
<b>MAESTRO<sub>sr</sub></b>	—	—	—

TAB. 6.2 – Identique à la figure 6.1 mais pour le dioxyde d’azote. le nombre de — indique l’importance du désaccord.

	SAGE II	SIII (LaRC)
<b>Imager VIS nord</b>	—	—
<b>Imager VIS sud</b>	—	—
<b>Imager NIR nord</b>	—	—
<b>Imager NIR sud</b>	—	—

TAB. 6.3 – Résumé des comparaisons effectuées entre les produits aérosols issus des mesures de l’instruments Imager (VIS et NIR) et ceux issus des mesures de SAGE II et SAGE III (LaRC). Les comparaisons dans l’hémisphère nord sont séparés de celles au sud. Le nombre de + symbolise l’importance de l’accord entre les 2 produits et le nombre de — l’importance du désaccord.

les comparaisons impliquant MAESTRO<sub>ss</sub>). On constate que FTS et MAESTRO surestiment fortement SPIRALE à basse altitude. Les inhomogénéités le long de la ligne de visée à haute altitude semblent être la raison de ces désaccords. Cette conclusion peut être généralisée à tous les instruments d’occultation et aux autres espèces réactives [Berthet et al., 2007]. En effet, aux abords du vortex polaire, la situation dynamique des masses d’air le long des lignes de visée de ces instruments peut être compliquée et générer des concentrations anormalement élevées ou basses aux niveaux inférieurs.

Les instruments Imager ne permettent pas, pour l’instant, de produire des coefficients d’extinction en bon accord avec SAGE II et SAGE III. L’équipe scientifique chargée du traitement des instruments Imager travaille encore aujourd’hui à l’amélioration de son algorithme, notamment par une meilleure caractérisation des différents problèmes affectant ces instruments.

D’autres espèces déduites des mesures de FTS ont été comparées à la mesure de SPIRALE. Nous résumons ci-dessous ces comparaisons.

- N<sub>2</sub>O : bon accord avec SPIRALE (-15 à 19%) en dessous de 24 km (FTS < SPIRALE).
- HNO<sub>3</sub> : FTS surestime SPIRALE de 13 à 45%. De plus, une couche de dénitrification n’est détectée que par SPIRALE,
- HCl : En dehors d’une couche où le rapport de mélange de HCl est faible selon la mesure SPIRALE, l’accord entre les 2 instruments est de 13 à 45% (FTS > SPIRALE).

- $\text{CH}_4$  : bon accord en dessous de 24 km (-7 à 10%).

La résolution verticale des instruments de ACE ne permettent pas de restituer des structures fines (de l'ordre du kilomètre) telle la couche de dénitrification observée par SPIRALE.

# Conclusion Générale

Le travail présenté dans cette thèse est divisé en trois parties distinctes. Ces trois parties ont toutefois en commun l'utilisation de données satellitaires issues de la même méthode de mesure (d'un point de vue géométrique) : l'occultation solaire. Ce type de mesure est dédié principalement à l'étude des hautes couches de l'atmosphère (stratosphère et mésosphère). La première partie concerne l'inversion des données de l'instrument SAGE III et la validation des mesures de cet instrument, la deuxième est une étude concernant les aérosols de feux de forêts et la troisième consiste en la validation des données des instruments de la mission ACE-SCISAT.

Nous avons recensé et décrit les différents instruments satellitaires d'occultation solaire qui ont servi dans cette thèse, à savoir SAGE II, SAGE III, POAM III et les instruments ACE-FTS, ACE-MAESTRO et ACE-IMAGER. Parmi ceux-ci, seuls les instruments ACE sont encore en fonctionnement aujourd'hui. L'instrument SOFIE, mis en orbite en avril 2007 utilise également l'occultation solaire. Nous ne nous sommes pas servi des données de cet instrument.

L'essentiel du travail effectué pendant ma thèse concerne l'inversion des transmissions spectrales de l'instrument SAGE III. Une version simplifiée d'un algorithme avait été testée sur des transmissions simulées et sur des données d'un instrument sous ballon par Bazureau [2001]. Nous avons appliqué cet algorithme aux transmissions déduites des données de SAGE III et nous l'avons amélioré.

Il apparut alors que les profils verticaux de concentration en dioxyde d'azote obtenus par notre algorithme présentaient de fortes oscillations quel que soit l'événement SAGE III étudié alors que les profils issus de l'algorithme officiel ne présentaient pas ces oscillations. De même, les profils verticaux de concentration en  $\text{NO}_2$  issus d'autres instruments n'oscillent pas de la sorte. Ce problème est lié à un défaut de l'instrument SAGE III : l'atténuateur utilisé pour éviter la saturation des détecteurs en mode solaire n'est pas neutre, principalement dans la région spectrale où le dioxyde d'azote absorbe le plus (vers 450 nm). Ce problème est résolu, dicit l'équipe du LaRC, en appliquant un lissage en altitude. Compte tenu du fait que l'atténuateur n'est pas neutre vers 450 nm, ce problème devrait affecter non seulement la restitution de la concentration en  $\text{NO}_2$  mais aussi le coefficient d'extinction des aérosols à 448.5 nm. Nous avons ainsi décidé d'appliquer ce lissage aux transmissions tangentes dans les canaux situés vers 450 nm. Les oscillations observées dans les profils verticaux de concentration en  $\text{NO}_2$  sont alors supprimées.

Dans le canal à 1545 nm, l'absorption du dioxyde de carbone a été prise en compte à l'aide du modèle MODTRAN version 5. Les épaisseurs optiques d'absorption de  $\text{CO}_2$  que nous avons obtenues avec ce modèle sont en très bon accord avec celles obtenues par l'équipe du LaRC (méthode EGA). Ainsi, l'accord entre notre coefficient d'extinction à 1545 nm

et le coefficient officiel s'avère très bon.

Une procédure de Monte Carlo prenant en compte les incertitudes sur les transmissions tangentes, les températures, les sections efficaces et l'altitude fut mise en place pour évaluer les incertitudes sur les différents produits.

La sensibilité de notre algorithme aux données spectroscopiques et au coefficient de diffusion moléculaire a été étudiée. Concernant ce dernier, il s'avère qu'aucune influence notable ne peut être imputée au choix des sections efficaces de diffusion moléculaire. Pour la spectroscopie ( $O_3$  et  $NO_2$ ), nous avons testé l'influence de la température à laquelle ont été calculées les sections efficaces utilisées dans notre algorithme sur les produits obtenus. Nous avons constaté que la température n'influe pas la restitution de l'ozone et influençait celles du dioxyde d'azote (différences de l'ordre de 10%) et peu celles des coefficients d'extinction des aérosols.

L'étude de validation de nos produits effectuées avec les produits SAGE III officiels et avec les produits issus d'un troisième algorithme (noté SPbSU) a révélé un bon accord pour tous nos produits, à l'exception du produit ozone mésosphérique. L'utilisation du canal UV de SAGE III s'avère nécessaire pour obtenir un profil d'ozone mésosphérique fiable. Nous avons également comparé nos produits avec ceux issus de mesures coïncidentes des instruments SAGE II et POAM III et constaté un bon accord pour l'ozone et le dioxyde d'azote. Pour les comparaisons avec POAM III, nous obtenons un bon accord pour les aérosols à 448 et 600 nm et un désaccord à 1020 nm. Les coefficients d'extinction des aérosols à 385 et à 450 nm de SAGE III sont globalement supérieurs à ceux de SAGE II : on constate un biais de 30% entre les deux mesures. A 520 et 1020 nm, SAGE III sous-estime SAGE II.

Une comparaison a également été effectuée avec les données du vol du 21 janvier 2003 de l'instrument sous SPIRALE. Aucune mesure coïncidente n'étant disponible, nous avons effectué une recherche de coïncidence à chaque altitude entre les rétrotrajectoires calculées à partir de SPIRALE et SAGE III. Un bon accord est obtenu pour l'ozone mais pas pour le dioxyde d'azote. Il reste des différences importantes même en prenant en compte les variations diurnes de  $NO_2$  le long de la rétrotrajectoire. Ces différences sont attribuées à la situation dynamique. En effet, les événements SAGE III coïncidents ont lieu aux abords du vortex polaire. Ainsi, la ligne de visée de SAGE III traverse des zones en dehors du vortex (riche en  $NO_2$ ) et à l'intérieur du vortex (pauvre en  $NO_2$ ). Les profils de concentration en  $NO_2$  restitués souffrent de cette situation dynamique complexe et, dans ce cas, l'hypothèse d'homogénéité sphérique n'est plus vérifiée.

Globalement, l'algorithme d'inversion de SAGE III développé au LOA fournit des produits fiables. Il est prévu d'intégrer à notre algorithme d'inversion les sections efficaces d'absorption de l'ozone et du dioxyde d'azote adaptées à la température de chaque niveau. Ainsi, notre produit  $NO_2$  serait encore amélioré.

Une étude des aérosols issus des feux de forêts de l'ouest canadien en août 2003 est présentée dans la deuxième partie. Nous avons, dans cette partie, utilisé les produits SAGE III officiels. Ces intenses feux de forêts ont été détectés par les instruments TOMS (indice aérosol élevé) et POLDER 2 (couche d'aérosol observé à près de 15 km d'altitude). Les mesures de SAGE III dans cette région et à cette période présentent une augmentation importante du coefficient d'extinction dans la basse stratosphère. A l'examen du produit SAGE III nuage, nous pouvons affirmer que ces augmentations ne sont pas dues à la présence de nuages dans la basse stratosphère. Nous avons alors analysé les variations

spectrales des coefficients d'extinction de SAGE III en considérant des aérosols sulfatés ou de feux de biomasse ou de suie. Il s'avère qu'il ne peut s'agir de suies. Par contre, nous n'avons pu déterminer s'il s'agissait plutôt d'aérosols sulfatés ou issus de feux de biomasse. A l'examen des propriétés microphysiques de ces particules que nous avons déterminé, nous avons constaté que la taille des aérosols dans cette couche n'est pas différente de la taille des aérosols juste au-dessus ou en-dessous de cette couche. Par contre, ils sont en plus grand nombres. C'est cette augmentation du nombre d'aérosols dans la basse stratosphère qui est à l'origine de l'augmentation des extinctions observée. L'origine de ces aérosols n'a cependant pas pu être démontrée. Les données altimétriques de POLDER 2 nous ont permis de corroborer l'altitude d'une de ces couches d'aérosol.

La dernière partie de cette thèse est consacrée à la validation des produits des instruments de la mission ACE-SCISAT. Pour ce faire, nous avons utilisé les données de mesures coïncidentes des instruments SPIRALE, SAGE II et SAGE III.

Globalement, les produits  $O_3$ ,  $N_2O$  et  $CH_4$  de l'instrument FTS sont en bon accord avec la mesure SPIRALE. Pour  $HNO_3$  et  $HCl$ , SPIRALE détecte une couche de 1.5 km vers 22 km dans laquelle les rapports de mélange de ces 2 espèces sont faibles. FTS ne détecte pas cette couche du fait de sa résolution verticale. En dehors de cette couche, FTS sur-estime SPIRALE pour ces deux espèces. En ce qui concerne  $NO_2$ , un désaccord persiste même après prise en compte des variations diurnes. Ce désaccord est également attribué aux conditions dynamiques complexes à haute altitude. Le fait d'avoir pu travailler avec les mesures SPIRALE m'a permis d'approfondir mes connaissances sur la chimie stratosphérique. Les comparaisons effectuées entre les données FTS et les données SAGE III (LOA) ont montré un bon accord pour l'ozone et que FTS sous-estime SAGE III (LOA) pour le dioxyde d'azote.

Les données de la mesure de SPIRALE ont également été comparées avec celles de l'instrument MAESTRO-VIS : on trouve un très bon accord pour l'ozone et un désaccord pour le dioxyde d'azote. Les comparaisons entre les mesures de MAESTRO-VIS et SAGE III (LOA) montrent globalement un bon accord pour l'ozone. Les rapports de mélange en ozone du spectromètre UV sont également en bon accord avec SAGE III (LOA) en dessous de 40 km. Pour  $NO_2$ , on trouve un bon accord pour les comparaisons du type MAEss/SIIIss et MAEss/SIIIsr et un désaccord pour les deux autres types de coïncidences.

Les coefficients d'extinction des aérosols déduits des mesures des imageurs visible et proche infrarouge ne sont pas en bon accord avec ceux de SAGE II et SAGE III (LaRC). L'amélioration de l'algorithme d'obtention des épaisseurs optiques atmosphériques tangentés est nécessaire afin d'obtenir des coefficients d'extinction fiable. Cela est d'autant plus important que cet instrument est le seul instrument d'occultation solaire fournissant aujourd'hui un produit aérosol stratosphérique dans le domaine visible - proche infrarouge.



# **ANNEXE A**

## Publications



**Remote sensing of stratospheric aerosols during intense forest  
fire using SAGE III data**

**C. Tétard, C. Brogniez, B. Bonnel**

Presented at the Society of Photo-Optical Instrumentation Engineers (SPIE) Conference

Bruges, Belgique, Septembre 2005

## Remote sensing of stratospheric aerosols during intense forest fire using SAGE III data

C. Tétard, C. Brogniez, B. Bonnel

Laboratoire d'optique atmosphérique, Université des sciences et technologies de Lille, France.

### ABSTRACT

During summer 2003, large areas of the West Canada (Alberta and British Columbia between 50°N and 60°N and between 105°W and 130°W) have undergone very important forest fires, which were detected by Total Ozone and Mapping Spectrometer (TOMS) and MODerate resolution Imaging Spectroradiometer (MODIS). Many Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (SAGE) III measurements obtained during this summer and over this region exhibit enhanced aerosol extinctions in the low stratosphere. SAGE III instrument, on board the Russian satellite METEOR 3M, measures the transmitted light through the earth limb using the solar occultation method. Inversion of transmission measurements allows retrieving vertical profiles of concentration of some gases (such as ozone or NO<sub>2</sub>) and vertical profiles of aerosol extinction coefficient at several wavelengths (from 384 to 1545 nm) in the stratosphere.

We have analyzed the aerosol spectral extinctions measured during correlative SAGE III events to observe the impact of these biomass burnings on the properties of stratospheric aerosols. We have inferred the aerosol microphysical properties (effective radius, number density, surface area density) assuming two different compositions corresponding to background (sulphate) and biomass burning aerosols. We have also compared the results to values obtained during unperturbed periods. It is found that a large number of aerosols was injected in the stratosphere and that SAGE III data cannot allow us to distinguish between both types of aerosols.

**Keywords:** SAGE III, forest fires, stratospheric aerosols, extinction coefficient, effective radius, particle density, surface area density, Volume density.

### 1. INTRODUCTION

Many studies are in progress today aiming at reducing uncertainties on the aerosol radiative forcing. The particles present in the stratosphere are fewer than those in the troposphere, but their time of residence is larger. Consequently their radiative impact is not negligible<sup>1</sup>. Moreover, it is recognized that they play an important role in the stratospheric ozone chemistry<sup>2,3</sup>.

The Russian satellite METEOR-3M with on its board the Stratospheric Aerosol and Gas experiment III spectrometer (SAGE III) was launched on December 2001 in a polar orbit. Since May 2002, this spectrometer developed by NASA provides essential information about terrestrial stratosphere. SAGE III measures the transmitted light through the earth atmosphere using solar and lunar occultation methods. Inversion of transmission measurements allows us to retrieve vertical profiles of concentration of some gases (such as ozone or NO<sub>2</sub>) and vertical profile of aerosols extinction coefficient at nine different wavelengths (from 384 nm to 1545 nm) in the stratosphere.

During summer 2003 (especially early august), large areas of the West Canada (Alberta and British Columbia, between 50°N and 60°N and between 105°W and 130°W) have undergone very important forest fires. The Canadian government talk about the worst forest fires of the century. More than 33 000 hectares are in fire (see the web site <http://flamexpert.com>).

Several satellite sensors were sensitive to these fires. Indeed, the MODIS instrument (MODerate resolution Imaging Spectroradiometer) detects these fires (see <http://rapidfire.sci.gsfc.nasa.gov>) and the instrument TOMS (Total Ozone Mapping Spectrometer) exhibits an aerosol index larger than usual. Also, many correlative SAGE III measurements were showing enhanced aerosol extinctions in the low stratosphere. We have analyzed these data to observe the impact of these biomass burnings on the properties of stratospheric aerosols. We have inferred their microphysical properties (effective radius, particle density, surface area density, volume density) from the SAGE III spectral extinction data and compared them to values during unperturbed periods.

The following paper is splitted in 2 parts. Section 2 describes some satellite observations of these fires and the method used to retrieve the microphysical properties of these aerosols from SAGE III measurements. A combined analysis is detailed in section 3.

## 2. SATELLITE OBSERVATIONS OF FOREST FIRES

In August 2003, regions of Alberta and British Columbia (West of Canada) have undergone very important forest fires. Many of these intense fires were counted by the Canadian authority (for more informations, see the web site <http://www.2003firestorm.gov.bc.ca/firestormreport/FirestormReport.pdf>).

Several satellite instruments were able to observe them and to give different informations.

### 2.1. MODIS

MODIS instrument (MODerate resolution Imaging Spectroradiometer) is a spectroradiometer equipped with 36 spectral bands (from 0.4 to 14.4  $\mu\text{m}$ ). Thanks to its large field of view ( $\pm 55^\circ$ ), MODIS is viewing the entire Earth's surface every 1 to 2 days. The resolution of this instrument is either 250 m or 500 m according to the spectral channel (<http://modis.gsfc.nasa.gov/>). In Figure 1, we can see examples of image taken by MODIS with a 500 m resolution on August 2 and 3, 2003. These pictures are a combination of three channels: 670 nm, 876 nm and 2155 nm. Forest fires are underlined by a white cross. Close to these fires we can easily distinguish opaque smoke plumes.

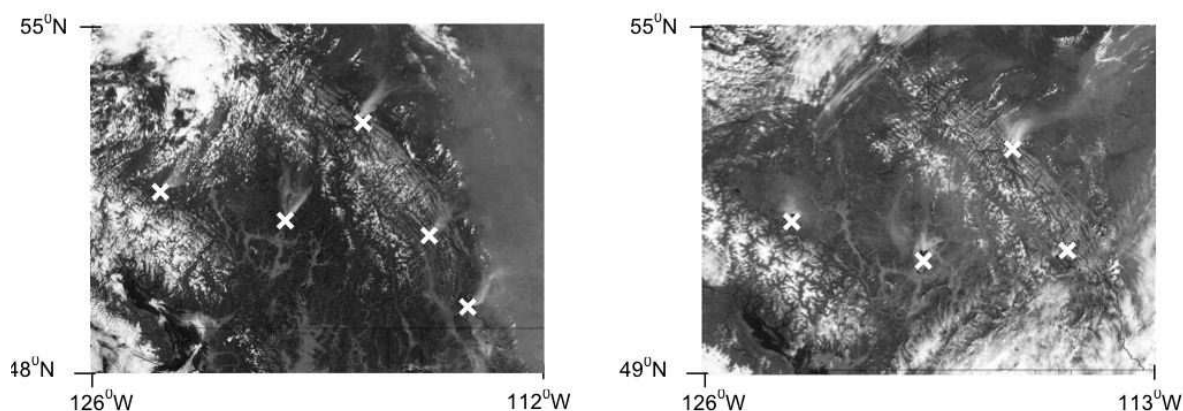


Figure 1: Fire and smoke across British Columbia and Alberta as seen by MODIS on August 2, 2003 on the left and on August 3, 2003 on the right. Respectively for August 2 and 3, the middle longitude is  $119^\circ$  W and  $120^\circ$  W and the middle latitude is  $51.5^\circ$  N and  $52^\circ$  N. White crosses are forest fires and the white/grey plumes close to them are smoke.

### 2.2. TOMS

Since 1979, a global data set of absorbing aerosol particles has been developed from Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) backscatter radiance measurements in the UV. These are represented by the Aerosol Index (AI), derived from the radiances at 360 nm. More information about TOMS aerosol index is given in Herman et al.<sup>4</sup>. We can observe in Figure 2 that the region of Alberta exhibits important values of aerosol index. It reaches 6.1 on August 2 and 8.6 on August 3. As explained by Hsu et al.<sup>5</sup>, a large value of the aerosol index may be explained by three reasons. First, by a large aerosol optical depth, secondly, by a weak single scattering albedo and, thirdly, by a high altitude of the aerosol layer. We can thus assume that these large aerosol indices can be caused by the smoke plumes observed on the MODIS images on Figure 1. Fromm et al.<sup>6</sup> have already reported such observations of very large AI (up to 17) on 3-4 August 1998 associated to a high altitude aerosol layer.

### 2.3. SAGE III

The spectroradiometer SAGE III (Stratospheric Aerosol and Gas Experiment) is the fourth of a generation of instruments developed by NASA using the solar occultation method. It has profited of all the experience of its predecessors: SAM (Stratospheric Aerosol Measurement) II and SAGE I and II. Spectral channels of SAGE III are covering ultra-violet radiation (290 nm) until near infra red (1545 nm).

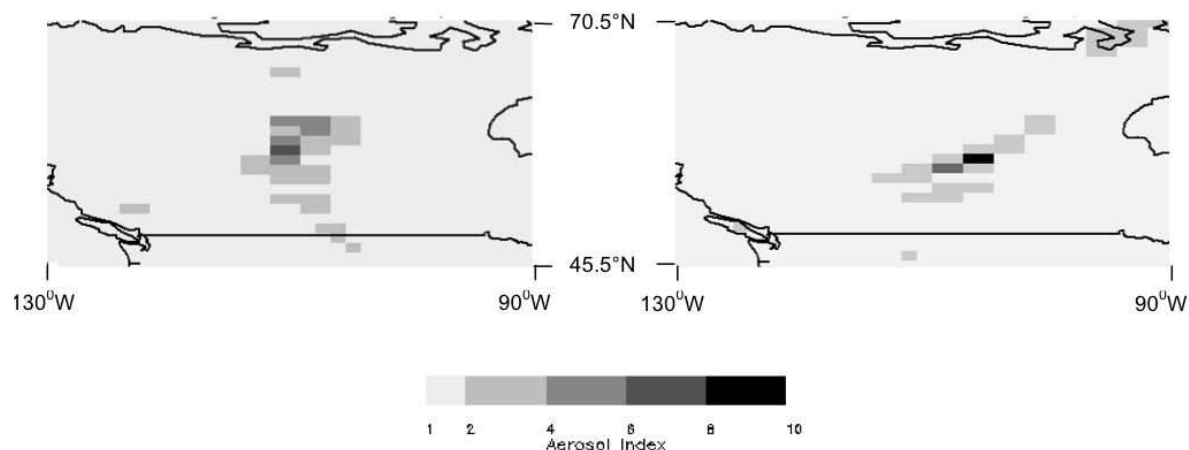


Figure 2: Map of TOMS aerosol index (AI) version 8 on August 2, 2003 on the left and on August 3, 2003 on the right. The highest values of these events are respectively, 6.1 and 8.6.

The method used is the measure of the attenuation of the solar radiation through the Earth atmosphere. This measure accounts for the absorption of various gases present in the line of sight, the Rayleigh scattering and the extinction (scattering and absorption) of aerosols. By removing the gaseous absorption and the Rayleigh scattering contributions, informations about aerosols are obtained.

Figure 3 shows vertical profiles of extinction coefficient of aerosols at few wavelengths (384, 755, 1021 and 1545 nm) and the associated uncertainties for two events close to west Canadian forest fires on 2-3 August 2003. During this period, the tropopause altitude derived from meteorological data of the NCEP (National Center for Environmental Prediction) was about 12 km on August 2 and about 13 km on August 3. We can see enhanced extinction coefficients at about 15 km in the stratosphere on both days, significantly above the tropopause.

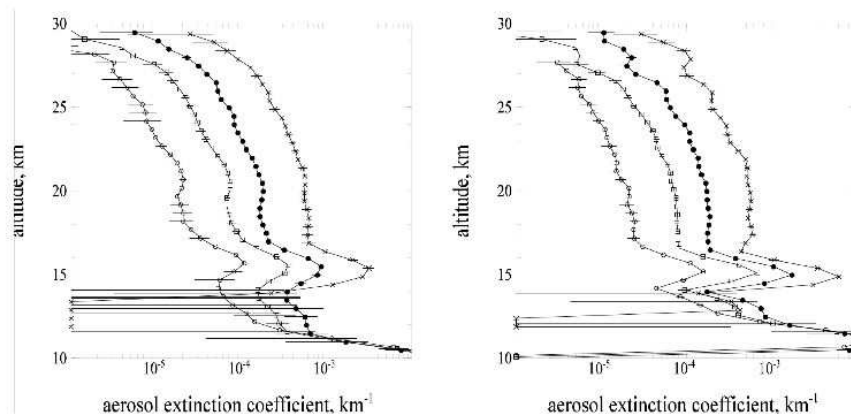


Figure 3: Vertical profiles of aerosol extinction coefficients for August 2, 2003 (3h40 am, UT) and August 3, 2003 (2h40 am, UT) in the regions in fire. Latitude is 52°N and longitude 121°W on August 2 (on the left) and 52°N-105°W on August 3 (on the right). The tropopause is located at about 12 km for August 2 and 13 km for August 3.

In early August 2003, many other SAGE III events in these regions exhibit also increasing extinction in the stratosphere.

It is often recognized that the main influence on the extinction coefficients of stratospheric aerosols is due to volcanic eruptions. So, we have checked if a volcanic eruption could be the source of this increasing extinction at 15 km. In 2003, there is no volcanic eruption sufficiently powerful to introduce particles in the stratosphere. To check that there was no cloud occurrence at this altitude, we have examined the cloud products retrieved from SAGE III measurements. Information on the presence of cloud and on the associated uncertainty is given by a pair of flags between 0 and 4. In Figure 4, we can observe a cloud at low altitudes (11 km on August 2 and 12 km on August 3) with bad uncertainties (flag 2, 3 or 4). That explains the increasing extinctions at these altitudes (Figure 3). Around 15 km we can be confident with the cloud absence. Consequently, the main responsible of this increasing extinction in the stratosphere should be the intense forest fire.

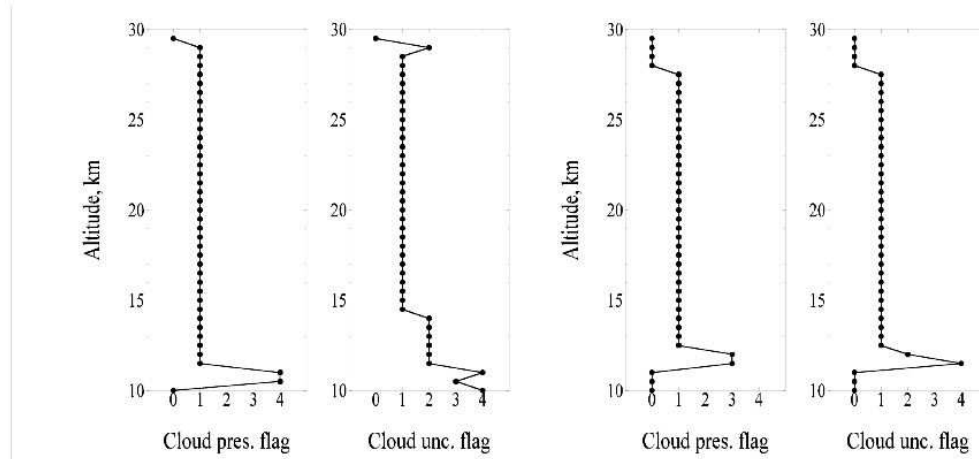


Figure 4: Vertical profiles of the cloud products: cloud presence and associated uncertainty on August 2, 2003 (on the left) and on August 3, 2003 (on the right). Cloud presence flag 0 and cloud uncertainty flag 0 means that there is insufficient input data. Cloud presence flag 1 and 2 mean that there is no cloud and flag 3 and 4 mean that a cloud is present. Cloud uncertainty flag 1 means that the determination of the cloud presence index can be made with confidence, flag 2,3 and 4 means that it can not be made with confidence<sup>7</sup>.

To endorse this hypothesis, we have tried to characterize these aerosols by retrieving their microphysical properties. For a distribution of spherical aerosols,  $n(r)$ , the extinction coefficient is written as:

$$\sigma_{ext}(\lambda) = \int_0^{\infty} \pi r^2 Q_{ext}(m, r, \lambda) n(r) dr \quad (1)$$

where  $Q_{ext}$  is the Mie extinction efficiency factor which depends on the complex refractive index  $m$ , on the wavelength  $\lambda$  and on the radius  $r$  of the particle. The log-normal distribution is:

$$n(r) = \frac{dN(r)}{dr} = \frac{N_0}{r \ln \sigma_g \sqrt{2\pi}} \exp \left[ -\frac{\ln^2(r/r_m)}{2 \ln^2 \sigma_g} \right] \quad (2)$$

In this expression,  $N_0$  is the number of particles per unit volume,  $\sigma_g$  is the geometric standard deviation and  $r_m$  is the median radius. To calculate the extinction coefficient, we have used the refractive index of sulphate particles<sup>8</sup> and of biomass burning particles<sup>9</sup>.

Thereafter, the effective radius and the surface area density (in  $\mu\text{m}^2 \cdot \text{cm}^{-3}$ ) are calculated as follows:

$$r_{eff} = \frac{\int_0^{\infty} r^3 n(r) dr}{\int_0^{\infty} r^2 n(r) dr} = r_m \exp(2.5 \ln^2 \sigma_g) \quad (3)$$

$$S = \int_0^{\infty} (4\pi \cdot r^2) n(r) dr \quad (4)$$

We have calculated the ratios  $\sigma(\lambda_i)/\sigma(\lambda_{ref})$  for normalized size distributions of different  $\sigma_g$  and  $r_m$  ( $\lambda_{ref}$  is a reference wavelength; we have chosen here 755 nm) and we have stored them in a look up table. Then, at each altitude, we have compared the ratios obtained for the measurements to the stored ratios and computed the aerosol difference:

$$AD = \sqrt{\frac{1}{NB} \sum_{i=1}^{NB} \left( \frac{\sigma^{meas}(\lambda_i) / \sigma^{meas}(\lambda_{ref}) - \sigma^{mod}(\lambda_i) / \sigma^{mod}(\lambda_{ref})}{\sigma^{meas}(\lambda_i) / \sigma^{meas}(\lambda_{ref})} \right)^2} \quad (5)$$

where the indices “meas” and “mod” are for measured and modelled extinction coefficients respectively and NB the number of wavelengths used. We select a model which gives the smallest AD.

In Figure 5, the retrieved effective radius is shown for the two SAGE III events, considering both refractive indices. The altitude range is restricted to 14–28 km because outside this range the retrieval is difficult due to some large extinction uncertainties. On both days the effective radius retrieved assuming biomass burning refractive index is often smaller than when assuming sulphate aerosols.

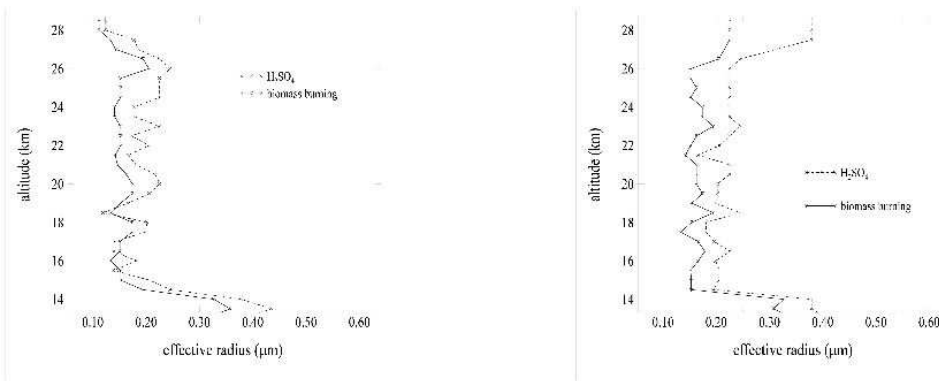


Figure 5: Vertical profiles of effective radius for August 2, 2003 (on the left panel) and for August 3, 2003 (on the right panel) derived from a log-normal distribution. Profiles are calculated assuming sulphate particles (dashed lines) and biomass burning particles (solid lines).

In Figure 6 is represented the aerosol difference. Below 20 km, the qualities of the retrieval are almost identical for both refractive indices except at 15 and 15.5 km on August 3: AD is 10% in assuming sulphate refractive index and 20% for biomass burning. Above 20 km, the fit with sulphate particles is a bit better. Globally, the SAGE III measurement seems to be not very sensitive to the refractive index.

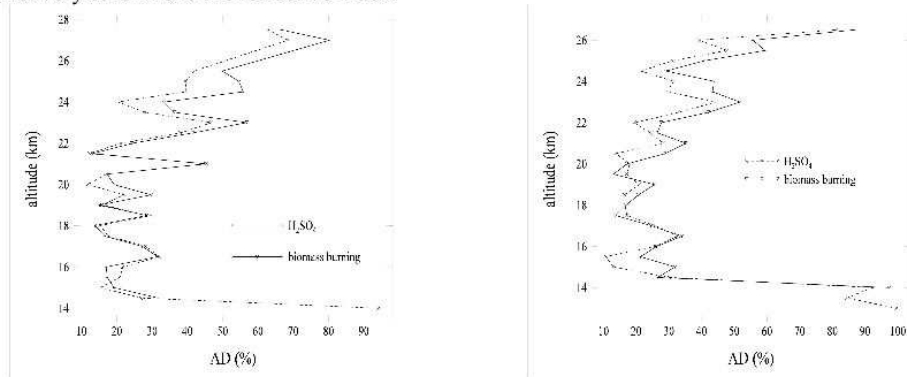


Figure 6: Vertical profiles of aerosol difference on August 2 (on the left) and on August 3 (on the right).

The particle number density is derived at each SAGE III wavelength from the ratio between the measured extinction coefficient and the simulated one calculated with Equation 1, it leads to a maximum of eight values. In Figure 7, are represented the mean particle number density (left panel) and the standard deviation (right panel). Figures (a) correspond to August 2 and Figures (b) to August 3. We see that we can trust the mean number densities since the standard deviations are rather weak. We observe an increasing number of sulphate or biomass burning aerosols in the 14–19 km altitude range, with a peak at about 15.5 km matching well with the enhanced extinction in figure 3. The

number density of particles of biomass burning reaches about  $30 \text{ particle.cm}^{-3}$  on August 2 and about 35 on August 3. For sulphate aerosols it reaches  $35 \text{ part.cm}^{-3}$  on August 2 and 15 on August 3.

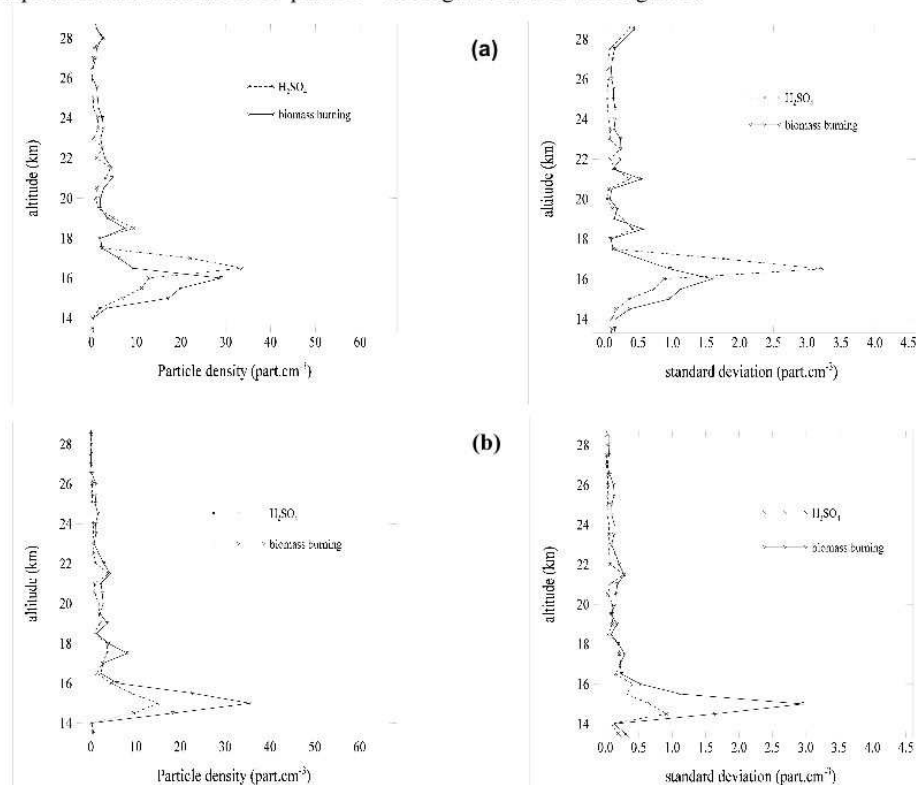


Figure 7: On the left panels are represented the particle number density (part.cm<sup>-3</sup>) and on the right panels, the dispersions. Part a is for August 2 and part b is for August 3. Dashed lines are for sulphate particles and solid lines for biomass burning particles.

Surface area density is also retrieved. Its determination is important for the modelling of heterogeneous chemical reactions on the surface of the aerosols. An increasing surface area generates more chemical reactions. Figure 8 depicts vertical profiles of this surface area on August 2 (on the left) and August 3 (on the right). Maximums match also with the maximums of extinction coefficients and of number densities observed in Figures 3 and 5. On August 2, the maximum for biomass burning particles is about  $5 \mu\text{m}^2.\text{cm}^{-3}$  and for sulphate it is  $3 \mu\text{m}^2.\text{cm}^{-3}$ . On August 3, maximums are about 10 and  $8 \mu\text{m}^2.\text{cm}^{-3}$  respectively.

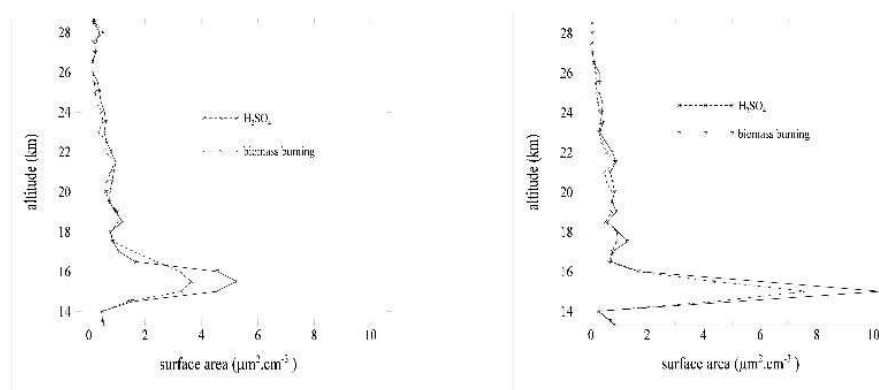


Figure 8: Vertical profiles of surface area ( $\mu\text{m}^2.\text{cm}^{-3}$ ) for August 2nd on the left and for August 3 on the right. Dashed line is for sulphate particles and solid line for biomass burning particles.

### 3. COMBINED ANALYSIS

The previous section suggests that several forest fires observed by MODIS in early August 2003 have also been detected by TOMS and by SAGE III. It seems that a correlation exists between the large values of absorbing aerosol index retrieved from TOMS measurements and the enhanced extinction coefficients in the stratosphere measured by SAGE III. Indeed, large values of the AI can be explained by an increasing altitude of the aerosol layer. This is consistent with the altitude of the aerosols layers seen by SAGE III (about 15 km). We can compare these cases of probable intrusion of aerosols in the stratosphere with an unperturbed case. Unperturbed means that there were no fire and no volcanic eruption. We use a SAGE III event on 1<sup>st</sup> June 2003 (50° N and 116° W) with tropopause at 10.7 km. The TOMS aerosol index is not represented here because it was smaller than 1. Figure 9 shows the vertical profiles of extinction coefficients, effective radius, particle densities and surface area densities retrieved from the SAGE III measurement. We do not observe any increasing extinction coefficients in the stratosphere. It reaches only  $5 \cdot 10^{-4} \text{ km}^{-1}$  at 384 nm and  $2 \cdot 10^{-5} \text{ km}^{-1}$  at 1545 nm. In order to fit the spectral variation of the extinction coefficients, we used the refractive index of sulphate aerosols. The mean effective radius is 0.21  $\mu\text{m}$ . It is not different from the one for the perturbed events of August 2 and 3 (respectively, mean values are 0.19 and 0.22  $\mu\text{m}$  assuming sulphate aerosols). We can then conclude that the aerosols responsible of the enhanced extinction at about 15 km on 2 and 3 August are particles as small as particles present in background conditions but whose composition is hard to define. The particle density is smaller than 7 particles. $\text{cm}^{-3}$  for June 1 whereas perturbed events exhibits values reaching more than 30 particles. $\text{cm}^{-3}$ . The surface area is smaller than 1  $\mu\text{m}^2 \cdot \text{cm}^{-3}$  on June and greater than 3  $\mu\text{m}^2 \cdot \text{cm}^{-3}$  on August. Apparently, the reason of the enhancement extinction coefficient in the stratosphere on early August is due to an enhancement of the number of particles.

Defense Meteorological Satellite Program (DMSP) provides us infrared and visible imagery that could be used to check that the smoke plume was elevated. The instrument used (OLS, Operational Linescan System) works in the wavelength ranges of 0.4 to 1.1  $\mu\text{m}$  and 10 to 13.4  $\mu\text{m}$ . Pixel size is 0.5x0.5  $\text{km}^2$ . Meteorological conditions in the regions of west Canada in August 2, 2003 (4h30 UT) are shown in the figure 10. The gray scale on the infrared image is the following: area represented in white is cold surface and in black, hot surface.

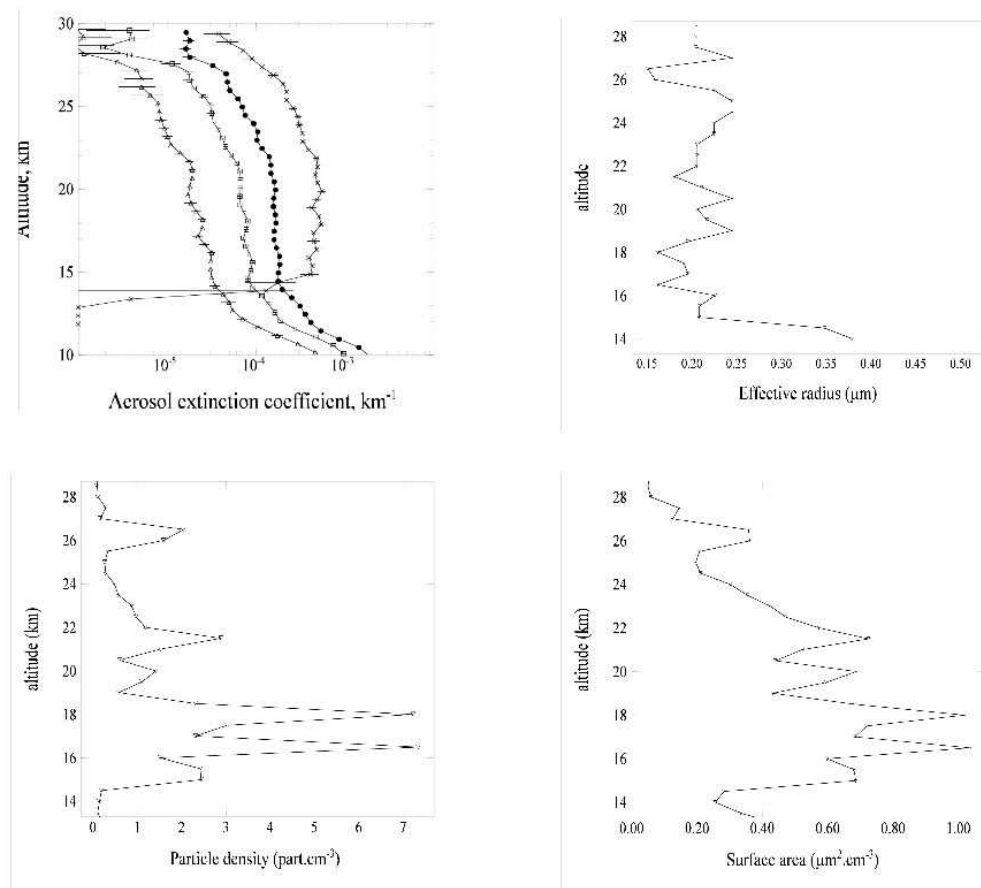




Figure 9: Vertical profiles of microphysical properties of aerosols during unperturbed conditions, on June 1, 2003 derived from SAGE III event at  $50^{\circ}\text{N}$  and  $116^{\circ}\text{W}$ .

Qualitatively, the bright white surface circled with a white line on the infrared image is thus very cold. We can then conclude that it is very high. Furthermore, this very bright area in infrared appears dark gray (or hard to see) in the visible image. That might say that it is an opaque, very deep smoke cloud. This surface corresponds to the high AI region in TOMS image presented in Figure 2. Moreover, cloud products of SAGE III state no cloud in this region. We can then conclude that this smoke cloud is in the stratosphere. The white cross indicates the position of the sub-tangent point of the SAGE III measurement on August 2 and the white arrow represents the direction of the line of sight. SAGE III has recorded this measurement one hour before this picture. Since there is no DMSP imagery one hour before this one, an isentropic back trajectory has been launched from the smoke cloud at several altitudes. It turns out that the high smoke plume was more in the west (almost the same latitude) so that the SAGE III line of sight has crossed it. Thus, the SAGE III measurement have been perturbed by this smoke plume.

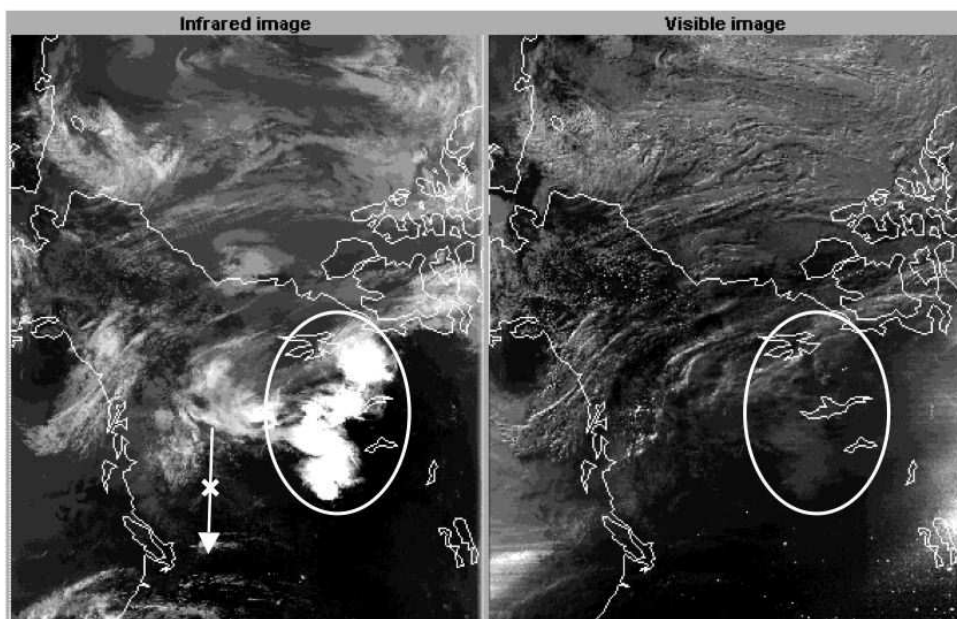


Figure 10: Infrared (on the left) and visible (on the right) imagery from DMSP on August 2, 2003 at 4h30 am (UT). White cross is sub-tangent point of the SAGE III event ( $52^{\circ}\text{N}$  -  $121^{\circ}\text{W}$  - 3h40 am) and the white arrow the direction of its line of sight. The white ellipse should be a very deep smoke cloud. The bottom of this white area is located at  $54^{\circ}\text{N}$  and  $106^{\circ}\text{W}$  and the top at  $65^{\circ}\text{N}$  and  $96^{\circ}\text{W}$ .

#### 4. CONCLUSIONS

Several satellite instruments have been sensitive to the intense forest fires of West Canada on August 2003. MODIS instrument has observed lots of them. Since TOMS aerosol indices have reached important values (6.1 on August 2 and 8.8 on August 3) and SAGE III exhibits enhanced extinction coefficients in the low stratosphere, we have assumed that aerosols may have been introduced in the stratosphere. The spectral variations of them allow us to retrieve the microphysical properties of this aerosol layer and we have compared them to values during unperturbed period. The retrieval has been done in assuming refractive indices of biomass burning particles and sulphate particles. Compared to unperturbed periods, for both refractive indices, it turns out that the effective radii are almost the same, the particle densities are much more important and the surface area densities also. The values are reported in Table 1. Since SAGE III measurements seem not to be sensitive to the refractive index, we can not determine the composition of the aerosols. The enhancement of the extinction can then be explained by an increasing of the number of particles in the stratosphere (Figure 7). We have checked the absence of clouds in this region by using the cloud products of SAGE III. We have also examined the meteorological conditions by using DMSP imagery. It turns out that a very deep and high smoke plume close to the SAGE III event can be the source of the enhanced extinction. Furthermore we have launched isentropic forward trajectories from the location of the SAGE III events and we have observed that many other SAGE III events measurements along these trajectories show the same increasing extinction coefficients in the stratosphere.

We will continue our study by improving the quality of the fit of the extinction ratios and by working on the polarized data provided by the instrument POLDER (POLarization and Directionality of the Earth's Reflectance).

		H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>			BIOMASS	
	$r_{\text{eff}}, \mu\text{m}$	$N_0, \text{cm}^{-3}$	$S, \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$	$r_{\text{eff}}, \mu\text{m}$	$N, \text{cm}^{-3}$	$S, \mu\text{m}^2 \text{cm}^{-3}$
2 August	0.19	max: 35	max: 3.5	0.15	max: 30	max: 5
3 August	0.22	max: 15	max: 7.8	0.17	max: 35	max: 10
June	0.21	mean: 1.4	mean: 0.43			

Table 1. Aerosol characteristics obtained with two refractive indices on 2 and 3 August 2003. Averaged effective radius, maximum of number density and of surface area density. Also are reported the mean values for a background situation on June.

### ACKNOWLEDGMENTS

The authors wish to express their gratitude to Isabelle Chiapello for her support in the TOMS data analysis, to Louis Gonzales for his informatic help and to Mike Fromm for his help in the DMSP imagery analysis.

### REFERENCES

1. Ramaswamy, R.A., Boucher, O., Haigh, J., Hauglustaine, D., Haywood, J.M., Myhre, G., Nakajima, T., Shi, G.Y., and Solomon, S., Radiative forcing of climate change, in *Climate Change 2001: The scientific basis: Contribution of working group I to the Third Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change*, edited by J.T. Houghton et al., pp. 349-416, Cambridge Univ. Press, New York, 2001.
2. Solomon, S., (1999) Stratospheric ozone depletion: A review of concepts and history, *Rev. Geophys.*, 37, 1397-1407.
3. Stachelin, J., Harris, N.R.P., Appenzeller, C., and Eberhard J., (2001) Ozone trends: A review, *Rev. Geophys.*, 39, 231-290.
4. Herman, J.R., Bhartia, P.K., Torres, O., Hsu, C., Seftor, C. and Celarier, E. (1997), Global distribution of UV-absorbing aerosols from Nimbus 7/TOMS data, *J. Geophys. Res.*, 102 (D14), 16911-16922.
5. Hsu, N., Herman, J., Torres, O., Holben, B., Tanre, D., Eck, T., Smirnov, A., Chatenet, B., and Lavenue, F. (1999), Comparisons of the TOMS aerosol index with Sun-photometer aerosol optical thickness: Results and applications, *J. Geophys. Res.*, 104 (D6), 6269-6279.
6. Fromm, M., Bevilacqua, R., Servranckx, R., Rosen, J., Thayer, J.P., Herman, J. and Larko, D. (2005), Pyrocumulonimbus injection of smoke to the stratosphere ; Observations and impact of a super blowup in northwestern Canada on 3-4 August 1998, *J. Geophys. Res.*, 110 (D8), D08205, doi: 10.1029/2004JD005350.
7. McCormick, M.P., and the SAGE III ATBD team, (2002) SAGE III Algorithm Theoretical Basis Document – cloud data products, version 2.1, March 26, 2002.
8. Russel, P.B., Livingston, J.M., Pueschel, R.F., Bauman, J.J., Pollack, J.B., Brooks, S.L., Hamill, P., Thomason, L.W., Stowe, L.L., Deshler, T., Dutton, E.G., Bergstrom, R.W. (1996), Global to microscale evolution of the Pinatubo volcanic aerosol derived from diverse measurements and analyses, *J. Geophys. Res.*, 101 (D13), 18745-18763.
9. Dubovik, O. and King, M. (2000), A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from sun and sky radiance measurements, *J. Geophys. Res.*, 105 (D16), 20673 – 20696.

## **Aerosol extinction retrieval in the 1545 nm SAGE III channel**

**C. Tétard, C. Brogniez, G. P. Anderson, J. R. Moore, L.W.  
Thomason**

Soumis à Journal of Geophysical Research

## Aerosol extinction retrieval in the 1545 nm - SAGE III channel

Cédric Tétard<sup>(1)</sup>, Colette Brogniez<sup>(1)</sup>, Gail P. Anderson<sup>(2)</sup>, James R. Moore<sup>(3)</sup>, Larry W. Thomason<sup>(4)</sup>

<sup>(1)</sup> Laboratoire d'Optique Atmosphérique, Université des Sciences et Technologies de Lille, France.

<sup>(2)</sup> Air Force Research Laboratory, Hanscom Air Force Base MA, USA

<sup>(3)</sup> Science Systems and Applications Inc., Hampton VA, USA

<sup>(4)</sup> NASA Langley Research Center, MS 475, Hampton VA, USA

### Abstract

The quality of the aerosol extinction coefficient in the 1545 nm-SAGE III channel retrieved by the LOA algorithm is evaluated in this study. As in the operational algorithm (developed at NASA/Langley Research Center), the LOA algorithm retrieves the 1545 nm aerosol extinction independently of the other SAGE III channels. The only contributors to extinction in this channel are the molecular scattering, the CO<sub>2</sub> absorption and the aerosol extinction. Accurate determinations of the molecular scattering and of the CO<sub>2</sub> absorption are thus important to retrieve an aerosol extinction of good quality in this channel. In order to evaluate the contribution of CO<sub>2</sub> absorption, the operational algorithm uses the EGA method and the LOA one uses the band model MODTRAN (version 4 and beta version 5). CO<sub>2</sub> slant path optical depths (SPOD) along the line of sight obtained with these two methods have been compared. It appears that although MODTRAN 5 and EGA are in a better agreement than MODTRAN 4 and EGA, it remains a difference of -2 to 10%. A study has been done to evaluate the sensitivity of the CO<sub>2</sub> SPOD retrieved using MODTRAN 5 to a variation of CO<sub>2</sub> volume mixing ratio (VMR). The variations of CO<sub>2</sub> VMR during the SAGE III mission did not imply important modification of CO<sub>2</sub> SPOD. Consequently a constant value has been chosen. To assess the quality of the LOA 1545 nm aerosol extinction product, a statistic study has been led with a set of 2000 SAGE III events chosen randomly. On average, the LaRC product is smaller than the LOA one below 16 km and it is the reverse above 16 km. Between 8 to 25 km, averages of relative differences lie between -8 to 8%. Above 25 km, the average relative differences increase exhibiting a bias larger than 15%.

### 1. Introduction

The SAGE (Stratospheric and Aerosol Gas Experiment) III instrument was launched in December 2001 onboard the Russian satellite Meteor-3M [Mauldin *et al.*, 1998] and stopped operating in March 2006. It is the successor of SAM, SAM II, SAGE and SAGE II instruments. Its quasi-polar orbit (inclination is about 99.53°) allows a geographical coverage from 45° to 80° in the northern hemisphere and 35° to 60° in the southern hemisphere.

It is a spectroradiometer equipped with a linear CCD array covering the 280-1020 nm wavelength range and with a single photodiode centered at 1545 nm. Operating mainly in the solar occultation mode, SAGE III is dedicated to the monitoring of Earth atmosphere. SAGE III provides global, long-term measurements of key atmospheric components like vertical profiles of ozone and aerosols from the upper troposphere through the stratosphere. It is also dedicated to provide stratospheric vertical distribution of trace gases like water vapor and nitrogen dioxide that play a significant role in radiative transfer and chemical processes leading to ozone depletion. Aerosol extinctions profiles are retrieved in nine channels centered at 384, 448.5, 520, 601, 675.5, 755, 869, 1022 and 1545 nm. Table 1 shows all the species contributing in each aerosol channel.

Since the aerosol loading was generally weak during the SAGE III life, the contribution of the CO<sub>2</sub> absorption to the total extinction in the 1545 nm channel is quite important and its accurate evaluation is requested to ensure a good retrieval of the aerosol extinction. Both LaRC operational algorithm [Rind *et al.*, 2002; Yue *et al.*, 2005] and LOA algorithm [Brogniez *et al.*, 2002] handle the 1545 nm channel independently of the other channels since there is only contribution from

Rayleigh scattering, aerosol extinction, CO<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>O continuum absorption. They differ only in the estimation of the CO<sub>2</sub> contribution and in the spatial inversion.

Section 2 is dedicated to the description of both inversions techniques and to the comparison of the CO<sub>2</sub> contributions using two versions of MODTRAN [Berk *et al.*, 1999 and Anderson *et al.*, 2007] for the LOA algorithm and an EGA (Emissivity Growth Approximation) method [Gordley *et al.*, 1981, Chiou *et al.*, 2003] for the LaRC algorithm. In section 3 the sensitivity to the CO<sub>2</sub> content is studied and section 4 shows a statistics on the comparison between LOA and LaRC (version 4) retrieved aerosol extinctions for a set of 2000 events chosen randomly. The last section gives the conclusions.

## 2. 1545 nm aerosol retrievals

Both algorithms use the same scheme to retrieve the aerosol extinction coefficient in the 1545 nm channel. The contributors of extinction in this channel are the Rayleigh scattering, the aerosol extinction and the absorption of CO<sub>2</sub> and H<sub>2</sub>O. In the LOA algorithm, after checking with MODTRAN, H<sub>2</sub>O absorption is considered to be negligible. In the operational algorithm, the water vapor absorption is cleared only below 20 km using the EGA method. The 1545 nm aerosol retrieval requires four steps for both algorithms.

First, the total slant path optical depth (SPOD)  $\delta_{total}^{SP}$  at each tangent altitude is derived from the SAGE III atmospheric transmission  $T$  :

$$\delta_{total}^{SP}(Zt, \lambda) = -\ln(T(Zt, \lambda)) = \delta_{aer}^{SP}(Zt, \lambda) + \delta_{CO_2}^{SP}(Zt, \lambda) + \delta_{Ray}^{SP}(Zt, \lambda), \quad (1)$$

where  $Zt$  is the tangent altitude,  $\lambda$  is the wavelength (here  $\lambda=1545$  nm).  $\delta_{aer}^{SP}$ ,  $\delta_{CO_2}^{SP}$  and  $\delta_{Ray}^{SP}$  are respectively the slant path optical depths of aerosol extinction, of CO<sub>2</sub> absorption and of Rayleigh scattering.

Following the computation of the total SPOD, the next step is the calculation of the molecular scattering along the SAGE III line of sight. This step is performed using the same data for both algorithms. For each SAGE III event, the calculation is done using the formulae of the molecular cross section and of the refractive index given in [Bucholtz, 1995] and the meteorological profiles provided by NCEP (National Center for Environmental Prediction). Comparisons between the Rayleigh SPOD from LaRC and LOA show differences smaller than 0.5% in the 10-90 km altitude range. The differences increase up to 1% from 10 down to 1 km and from 90 up to 95 km.

The third step is the determination of the CO<sub>2</sub> SPOD, for that the two algorithms do not use the same method. One of the difficulties of such a calculation is the modeling of the very irregular absorption band in this spectral region.

The operational algorithm determines the CO<sub>2</sub> contribution with the EGA using HITRAN 2000 database. The EGA method involves the pre-calculation of a grid transmission as a function of temperature, pressure and mass path using a constant CO<sub>2</sub> volume-mixing ratio (VMR) equal to 372 ppmv. The ray path is divided into homogeneous segments corresponding to the intersection between the spherical atmospheric layers and the ray path. A temperature, a pressure and a mass path characterize each layer. Then the EGA method assumes a homogeneous pseudo mass path instead of inhomogeneous mass paths. The pseudo mass path is computed so that it produces the same absorptivity than that produced by the inhomogeneous mass paths.

The LOA algorithm estimates the CO<sub>2</sub> SPOD by using the statistical band model MODTRAN [Kneizys *et al.*, 1996] with a constant CO<sub>2</sub> VMR equal to the same value as that used in the LaRC operational algorithm). The first estimation of CO<sub>2</sub> SPOD has been done with MODTRAN 4 – version 3 [Berk *et al.*, 1999]. Figure 1 shows the vertical profiles of Rayleigh, CO<sub>2</sub> and aerosol relative contributions to the total SPOD for a single SAGE III event chosen randomly. For this event, the tropopause is located at 9.5 km. Thus the increasing contribution of aerosol below this altitude can be explained by the presence of a cloud (it is confirmed by the weak spectral variation of the SAGE III aerosol extinction coefficient that can be observed). Between 9.5 and 22 km, the main contributor to the total SPOD is the aerosol reaching 40 - 45%. Over this altitude range, CO<sub>2</sub>



contribution lies between 30 to 35% and that of Rayleigh scattering between 25 to 30%. Above 22 km the main contributor becomes the CO<sub>2</sub> absorption, reaching almost 60% while the contribution of aerosol extinction strongly decreases, becoming less than 10% and the Rayleigh scattering contribution remains almost the same. This figure highlights the necessity of a very accurate computation of Rayleigh scattering and CO<sub>2</sub> absorption optical depths to retrieve a vertical profile of aerosol extinction at 1545 nm of a good quality.

Figure 2 shows the vertical profiles of CO<sub>2</sub> SPOD retrieved using EGA (solid line), MODTRAN 4 (dotted line) for 4 SAGE III events chosen randomly: two in the northern hemisphere and two in the southern one (the one in the left top panel corresponds to the event used in Figure 1). Above 40 km, the EGA and MODTRAN 4 profiles differ more and more, then at 55 km, the EGA profiles stop while MODTRAN 4 profiles go higher. This is because EGA method assumes the top of the atmosphere (TOA) at about 55 km whereas MODTRAN 4 considers it is at 100 km. If we compute the CO<sub>2</sub> SPOD using MODTRAN 4 with the TOA at 55 km (not shown in Figure 2 for clarity), the MODTRAN 4 profiles become very close to the EGA profiles between 40 to 55 km. Nevertheless, we have checked that the impact of the TOA in this CO<sub>2</sub> SPOD calculation has a negligible impact on the aerosol extinction retrieval, so in the following, all the MODTRAN calculations (including those done with MODTRAN 5) are carried out with the TOA at 100 km. Figure 3 depicts the corresponding relative differences. The dotted lines correspond to the differences between CO<sub>2</sub> SPOD retrieved using EGA method and MODTRAN 4. Below 40-45 km, the vertical profiles present relative differences between 1 to 13% (MODTRAN 4 greater than EGA) for the 4 events. Above 40-45 km these relative differences strongly increase, reaching more than 80% at 55 km. As explained before it is due to the strong decrease of CO<sub>2</sub> SPOD-EGA, as observed in Figure 2, because of the different upper limits of the atmosphere. As expected, with the same TOA, the relative differences are strongly reduced above 40-45 km for the 4 events (not shown in the Figure 3 for clarity). For all these 4 events, the discrepancies between MODTRAN 4 and the EGA method below 40 km can be attributed to the differences in the modeling of the absorption band.

Thus, we have tested a beta version of MODTRAN 5 [Anderson *et al.*, 2007]. The main differences with MODTRAN 4 that are of interest for our study are a much finer spectroscopy – the spectral resolution can be as fine as 0.1 cm<sup>-1</sup> – and the use of the HITRAN 2004 database instead of HITRAN 2000. For the CO<sub>2</sub> band with which we are concerned here, the differences between MODTRAN 4 and 5 are attributed to the improved line-shape needed by the finer spectral resolution, not to the different HITRAN databases.

The vertical profiles of CO<sub>2</sub> SPOD retrieved using MODTRAN 5 (dashed lines with cross) are reported in Figure 2 and appear rather close to SPOD-MODTRAN 4 profiles. The relative differences between SPOD-MODTRAN 4 and SPOD-MODTRAN 5 (solid line) are reported in Figure 3. Below 35 km, they are around 6% (SPOD-MODTRAN 5 smaller than SPOD-MODTRAN 4). Above 35 km there are almost no difference between SPODs from MODTRAN 4 and MODTRAN 5. Relative differences between SPOD-MODTRAN 5 and SPOD-EGA (dashed lines with cross in Figure 3) are much smaller than those between SPOD-MODTRAN 4 and SPOD-EGA (dotted lines). SPOD-EGA is greater than SPOD-MODTRAN 5 below 10 km, while it is the reverse above. Over the 0-25 km altitude range, the relative differences between CO<sub>2</sub> SPOD from MODTRAN 5 and EGA are smaller than 5%, in the 25-40 km range they increase slowly, then above they increase strongly because of the TOA difference as for MODTRAN 4. Computations conducted using MODTRAN 5 with the TOA at 55 km lead to the same conclusions as previously for MODTRAN 4. Below 40 km, the remaining differences can still be attributed to the differences in the modeling of the absorption band in MODTRAN and in the EGA method. There is better agreement of SPOD-EGA with SPOD-MODTRAN 5; therefore, in the following the CO<sub>2</sub> contribution will be computed using this improved version, MODTRAN 5.

After removal of the molecular scattering SPOD and of the CO<sub>2</sub> absorption SPOD, vertical profile of 1545 nm aerosol extinction  $\beta_{\text{ext}}$  is obtained by using a spatial inversion. The operational algorithm applies a modified Chahine method. For the LOA algorithm, an onion peeling method was selected rather than Chahine spatial inversion because it is a more reliable and a more robust technique [Bazureau, 2001].

Figure 4 shows the vertical profiles of aerosol extinction coefficient  $\sigma_{\text{ext}}$  retrieved by LaRC algorithm (dashed lines) and by LOA algorithm (solid lines) using MODTRAN 5 for the calculation of the  $\text{CO}_2$  contribution for the same previous SAGE III events and Figure 5 shows the corresponding relative differences computed as  $100 * (\beta_{\text{ext}}^{\text{LaRC}} - \beta_{\text{ext}}^{\text{LOA}}) / \text{mean}$ . The vertical range used for comparisons is restricted to altitude range from 10 to 30 km because the SAGE III official profiles start often around 10 km or below are perturbed by clouds and above 30 km the aerosol load is so low that it is difficult to detect it. For the 4 events, the vertical profiles of aerosol extinctions retrieved by the two algorithms appear in a good agreement. Relative differences lie between -10 to 10%, except at the highest altitudes where aerosols become hardly detectable as told previously. At low altitude, the four vertical profiles of aerosol extinction coefficient exhibit a strong increase (Figure 4) due to the presence of high clouds at these altitudes (checked thanks to the weak spectral variation of the SAGE III aerosol extinction coefficients).

### 3. Sensitivity study

Carbon dioxide is a well mixed gas and has an almost constant VMR over much of the middle atmosphere, the photodissociation of  $\text{CO}_2$  occurs only above about 80 km. Nevertheless the  $\text{CO}_2$  mixing ratio is not constant versus time [Boone *et al.*, 2005].

The value used in the EGA calculation is 372 ppmv and also that we have taken in the MODTRAN 5 calculation to minimize the differences between the two algorithms.

To study the effects of a change of this value, we have computed the  $\text{CO}_2$  SPOD with several  $\text{CO}_2$  VMR around this mean value for a single SAGE III event. We have chosen four values according to the VMR range available in IPCC [2007].

Figure 6 shows the results of this study. The different vertical profiles of  $\text{CO}_2$  SPOD are very close. For a  $\text{CO}_2$  VMR change of 8 ppmv, the  $\text{CO}_2$  SPOD varies only by 1.2%. The differences increase slightly with increasing altitude. That corresponds to a maximum SPOD variation of -1.48% (at 30 km). It appears thus reasonable to use a constant  $\text{CO}_2$  VMR over all the duration of the SAGE III mission.

### 4. Statistics

A statistical study has been carried out to evaluate the mean agreement between the two aerosol retrievals. Comparisons between profiles of SAGE III aerosol extinction coefficient retrieved by LaRC algorithm and by LOA algorithm have been conducted on a sample of  $n=2000$  SAGE III events randomly selected in the whole archive (neither hemispheric nor seasonal effects were studied here). We have computed the root mean square (equation 4) of the relative differences between LaRC and LOA aerosol extinction at each altitude  $z$ :

$$\text{rmsd}(z) = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n (\text{DIFF}_i(z))^2}, \quad (4)$$

with  $\text{DIFF}_i(z) = \frac{\beta_i^{\text{LaRC}}(z) - \beta_i^{\text{LOA}}(z)}{\text{AVER}_i(z)} \times 100$ , where  $\text{AVER}_i(z)$  is the average of LOA and LaRC aerosol

extinction coefficients retrieved at altitude  $z$ . We have also calculated the mean of the relative differences (equation 5) to see if there is a bias between the two retrievals:

$$\overline{\text{DIFF}}(z) = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \text{DIFF}_i(z), \quad (5)$$

The standard deviation around the mean is given by:

$$\sigma(z) = \sqrt{\frac{1}{n-1} \sum_{i=1}^n \left( \text{DIFF}_i(z) - \overline{\text{DIFF}}_i(z) \right)^2}, \quad (6)$$

Figure 7 shows the results of the comparisons. We have also plotted the mean uncertainties on the LaRC 1545 nm aerosol extinction with the corresponding dispersion.

In average LOA extinction coefficients are larger than LaRC coefficients below about 13 km. Relative differences vary from about -7% (at 8 km) to about 0% (at 13 km). At these altitudes the dispersions around the mean are large. The mean uncertainties on the extinction are larger than 40% with a high dispersion, meaning that the extinction is difficult to retrieve at these low altitudes.

In the 13 – 23 km altitude range, there is no bias between the products of the two algorithms; relative differences are between -3 to 3%. Over this altitude range, the dispersion is relatively small. The root mean square of relative differences is lower than 13% indicating a good agreement between the products. In addition, the mean uncertainties are reasonable meaning that the aerosol extinction can be retrieved with confidence.

Above 23 km, averages of relative differences increase strongly (up to 25%). The RMS of relative difference increases, reaching almost 55% at 32 km. The low aerosol loads at these altitudes imply a very low extinction at 1545 nm, with values smaller than  $10^{-5} \text{ km}^{-1}$ . According to the very large mean uncertainties, these values are near the limit of what SAGE III is able to measure reliably. This can explain partly the disagreement observed in that altitude range between the two products.

## 5. Conclusion

We have studied the SAGE III 1545 nm aerosol extinction profiles retrieved by the algorithm developed at LOA. The contribution of CO<sub>2</sub> absorption in this channel is first retrieved by MODTRAN 4 model and compared to that retrieved using EGA method used by NASA/LaRC algorithm for four events. A similar behavior is observed for these 4 events: relative differences are of the order of 10% below 40 km and strongly increase above due to different upper limits of the atmosphere. CO<sub>2</sub> SPOD retrieved with MODTRAN 4 are larger than that retrieved using EGA method. A new version of MODTRAN (beta version 5) has been successfully tested to improve the comparisons with EGA method. Below 40 km, the relative differences between EGA CO<sub>2</sub> SPOD and MODTRAN 5 CO<sub>2</sub> SPOD lie between around -2 and 10%. Above 40 km, strong differences are still observed as for MODTRAN 4, due to the different TOA. By using the same TOA (55 km) in MODTRAN 5, the relative differences between MODTRAN 5 and EGA SPOD are reduced above 40 km. Nevertheless, all the MODTRAN calculations are done with the TOA at 100 km because a change of the TOA in the CO<sub>2</sub> SPOD calculation does not induce any change in the aerosol retrieval in the 1545 nm channel. To retrieve the aerosol extinction in the 1545 nm channel, the contribution of CO<sub>2</sub> absorption was thus computed using MODTRAN 5. After the removal of CO<sub>2</sub> absorption and Rayleigh scattering from the total slant path optical depth, the residual is the contribution of aerosol extinction. The aerosol extinction coefficient is then derived after performing the spatial inversion. We have compared the operational SAGE III aerosol product to our product retrieved using MODTRAN 5 for the 4 events. It proves that the agreement between LOA-MODTRAN 5 and LaRC is good over all the 12-26 km altitude range with about -2 to 5% relative differences.

A sensitivity study has been led concerning the CO<sub>2</sub> volume mixing ratio put in MODTRAN 5. It appears that the small variations of CO<sub>2</sub> VMR during the SAGE III mission implies very small CO<sub>2</sub> SPOD variations (1.2% at the start date relatively to the final value) over all the altitude range where stratospheric aerosols are detectable (around 10 to 30 km). Consequently, a constant CO<sub>2</sub> VMR can be used to compute the CO<sub>2</sub> SPOD over all the duration of the SAGE III mission.

Finally, a statistical study dedicated to evaluate the agreement between the two aerosol retrievals in the 1545 nm SAGE III channel has been carried out using a set of 2000 SAGE III events chosen randomly in the whole archive. On average, relative differences with the operational product are lower than 8% in absolute value between 8 - 25 km, that provides a validation of both LOA and



LaRC retrievals over this altitude range. At higher altitudes, it seems that the larger differences could be mainly attributed to the low aerosol load.

### Acknowledgements:

The authors appreciate very fruitful discussions with E.P. Shettle. They thank C. Deroo and L. Gonzalez for their help in handling data.

This study was supported by CNES within the French program TOSCA.

The figures were drawn using the Mgraph package developed at LOA by L. Gonzalez and C. Deroo (<http://www-loa.univ-lille1.fr/Mgraph>).

### References

- Anderson, G.P., A. Berk, J.H. Chetwynd, G. Harder, J.M. Fontenla, E.P. Shettle, R. Saunders, H.E. Snell, P.X. Pilewskie, B.X. Kindel, J.A. Gardner, M.L. Hoke, G.X. Felde, R.B. Lockwood and P.K. Archaya (2007), Using the MODTRAN<sup>TM</sup>5 Radiative Transfer Algorithm with NASA Satellite Data: AIRS and SORCE, in *Algorithms and Technologies for Multispectral, Hyperspectral, and Ultraspectral Imagery XIII*, edited by S.S. Shen and P.E. Lewis, Proc. of SPIE Vol. **6565**, 65651O, doi: 10.1117/12.721184.
- Bazureau A. (2001), Préparation de l'inversion des mesures de transmission de l'expérience spatiale SAGE III: Mise en place et étude des algorithmes d'inversion. Application aux mesures des expériences ballon AMON et SALOMON, Ph. D. thesis, Université de Lille1.
- Boone, C. D., R. Nassar, K. A. Walker, Y. Rochon, S. D. McLeod, C. P. Rinsland and P. F. Bernath (2005), Retrievals for the atmospheric chemistry experiment Fourier-transform spectrometer, *Appl. Opt.*, **44**, 7218-7231.
- Brogniez, C., A. Bazureau, J. Lenoble and W. P. Chu (2002), SAGE III measurements : a study on the retrieval of ozone, nitrogen dioxide and aerosol extinction coefficients, *J. Geophys. Res.*, **107**, D24, doi:10.1029/2001JD001576.
- Bucholtz, A. (1995), Rayleigh-scattering calculations for the terrestrial atmosphere, *Appl. Opt.*, **34**, 2765-2773.
- Chiou E. W., W. P. Chu, L. W. Thomason, D. C. Benner and A. C. Edwards (2003) Intercomparisons of EGA, CGA and LBL forward model computation schemes for SAGE III water vapor retrieval, in *Multispectral and Hyperspectral Remote Sensing Instruments and Applications* edited by Allen M. Larar, Qingxi Tong, Makoto Suzuki, Proc. of SPIE Vol. **4897**, 72 – 81.
- Forster, P., V. Ramaswamy, P. Artaxo, T. Berntsen, R. Betts, D.W. Fahey, J. Haywood, J. Lean, D.C. Lowe, G. Myhre, J. Nganga, R. Prinn, G. Raga, M. Schulz and R. Van Dorland (2007) Changes in Atmospheric Constituents and in Radiative Forcing. In: *Climate Change 2007: The Physical Science Basis. Contribution of Working Group I to the Fourth Assessment Report of the Intergovernmental Panel on Climate Change* [Solomon, S., D. Qin, M. Manning, Z. Chen, M. Marquis, K.B. Averyt, M. Tignor and H.L. Miller (eds.)]. Cambridge University Press, Cambridge, United Kingdom and New York, NY, USA.
- Gordley, L. L., and J. M. Russell III (1981), Rapid inversion of limb radiance data using emissivity growth approximation, *Appl. Opt.*, **20**, 807-813.
- Kneizys, F.X., L.W. Abreu, G.P. Anderson, J.H. Chetwynd, E.P. Shettle, A. Berk, L.S. Bernstein, D.C. Robertson, P. Acharya, L.S. Rothman, J.E.A. Selby, W.O. Gallery, and S.A. Clough (1996), The MODTRAN 2/3 Report and LOWTRAN 7 Model, Ed. by L. W. Abreu, and G. P. Anderson, Prepared by Ontar Corporation for PL/GPOS.
- Mauldin, L. E., R. Salikhov, S. Habib, A. Vladimirov, D. Carraway, G. Petrenko, and J. Comella (1998), Meteor-3M-/Stratospheric Aerosol and Gas Experiment III (SAGE III), Proc. SPIE Int. Soc. Opt. Eng., **3501**, 355 – 365.
- Rind, D., M. P. McCormick, and the SAGE III ATBD team (2002), SAGE III Algorithm Theoretical Basis Document (ATBD): Solar and Lunar Algorithm, Tech. rep.

Yue, G. K., C. H. Lu and P. H. Wang (2005), Comparing aerosol extinctions measured by Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (SAGE) II and III satellite experiments in 2002 and 2003, *J. Geophys. Res.*, 110, D11202, doi: 10.1029/2004JD005421.

## Figure captions

**Figure 1.** Relative contributions of Rayleigh scattering (solid line), CO<sub>2</sub> absorption (dashed line) and aerosol extinction (solid line with square) to the total slant path optical depth for a single SAGE III event (01126820v04).

**Figure 2.** Vertical profiles of CO<sub>2</sub> SPOD retrieved using EGA method (solid line), MODTRAN 4 (dotted line) and MODTRAN 5 (dashed line with cross) for 4 SAGE III events. Below 40 km, profiles are so close that they are difficult to distinguish.

**Figure 3.** Vertical profiles of relative differences between CO<sub>2</sub> SPOD calculated using EGA method and CO<sub>2</sub> SPOD calculated using MODTRAN 4 (dotted lines) and MODTRAN 5 (dashed lines with cross) for the same SAGE III events as in Figure 2. Relative differences are computed as  $100 \cdot (\text{MODTRAN} - \text{EGA}) / \text{mean}$ . The solid lines correspond to the relative differences between MODTRAN 4 and MODTRAN 5 calculated as  $100 \cdot (\text{MODTRAN 4} - \text{MODTRAN 5}) / \text{mean}$ .

**Figure 4.** SAGE III vertical profiles of aerosol extinction coefficient at 1545 nm retrieved by LaRC algorithm (dashed lines) and by LOA algorithm using MODTRAN 5 to compute the contribution of CO<sub>2</sub> absorption in this channel (solid lines) for the same SAGE III events as in Figures 2-3.

**Figure 5.** Vertical profiles of relative differences between 1545 nm aerosol extinction coefficient retrieved by LaRC and that of calculated using LOA algorithm with MODTRAN5 for CO<sub>2</sub> contribution for the same SAGE III events as in Figures 2-3-4. Relative differences are computed as  $100 \cdot (\beta_{\text{ext}}^{\text{LaRC}} - \beta_{\text{ext}}^{\text{LOA}}) / \text{mean}$ .

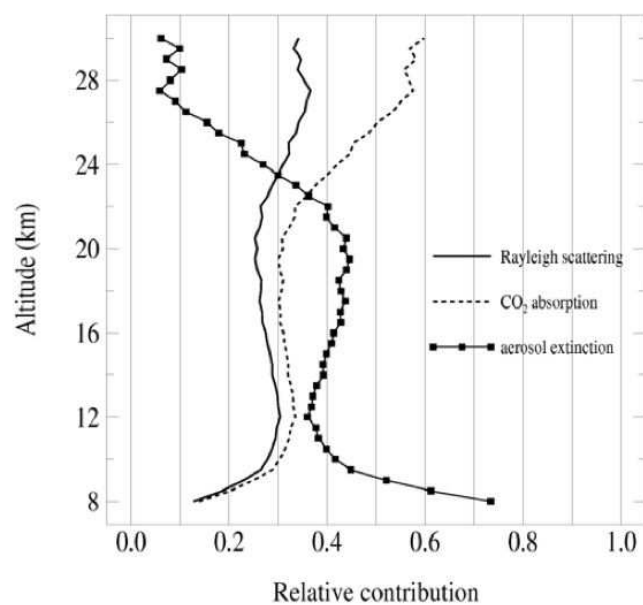
**Figure 6.** Vertical profiles of relative differences between CO<sub>2</sub> SPOD computed using MODTRAN 5 with different CO<sub>2</sub> VMR (see legend) and CO<sub>2</sub> SPOD computed using MODTRAN 5 with 372 ppmv for the same event as in figure 1.

**Figure 7.** Vertical profile of the mean relative difference between SAGE III aerosol extinction coefficients at 1545 nm retrieved by LaRC algorithm and by LOA algorithm using MODTRAN 5 (triangles) for a sample of 2000 events (see text). Dispersion around the mean is represented at each altitude by the horizontal solid line. The black dots represent the vertical profile of root mean square of the relative differences. The solid line represents the mean uncertainties on the LaRC extinction values. The horizontal dashed lines are the dispersion around the mean.

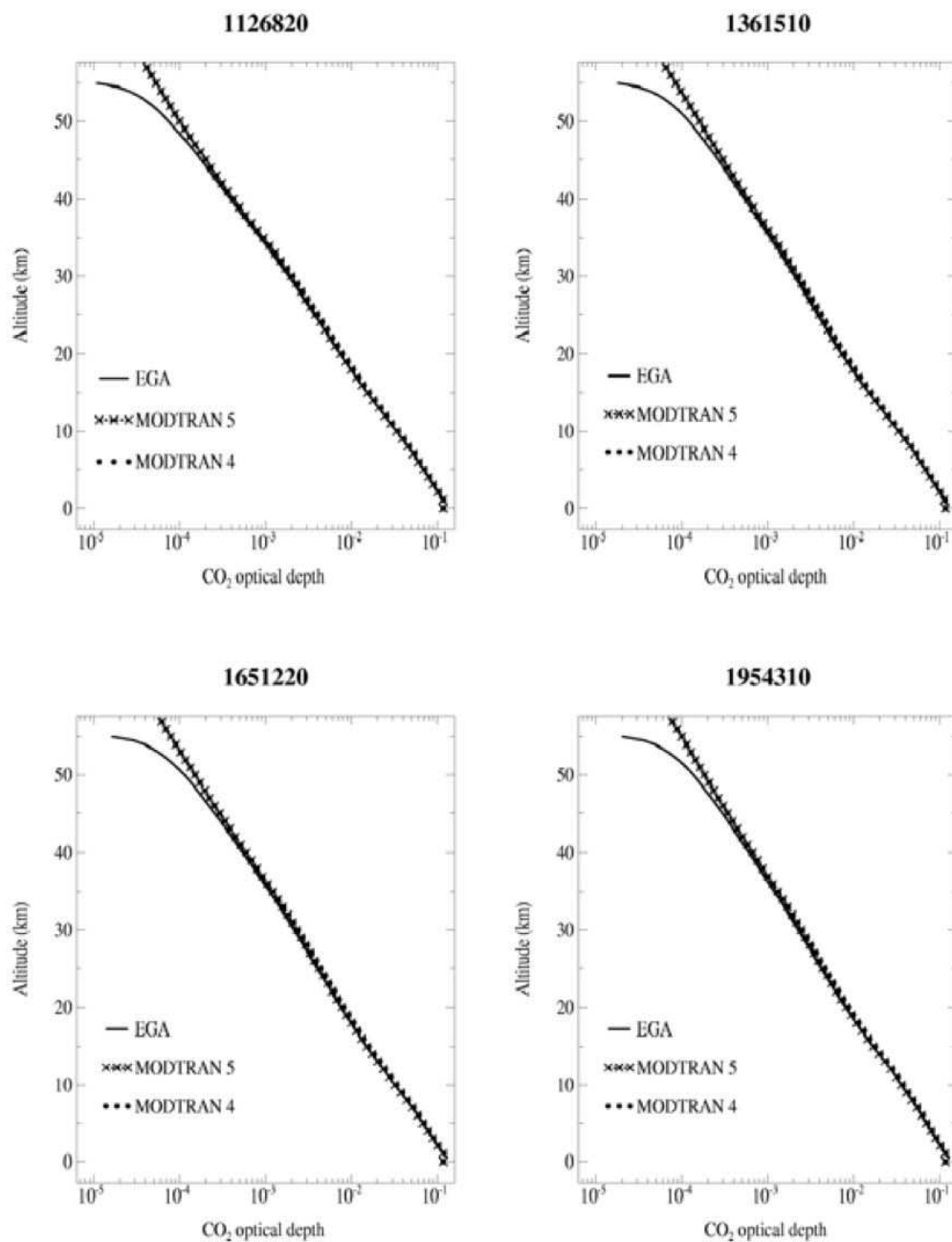
**Table**

<b>Aerosol channel</b>	<b>Species contribution</b>
384.26 nm	Aerosol, O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub>
448.5 nm	Aerosol, O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub>
520.31 nm	Aerosol, O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub>
601.23 nm	Aerosol, O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O
675.57 nm	Aerosol, O <sub>3</sub> , NO <sub>2</sub>
755.37 nm	Aerosol, O <sub>3</sub>
869.33 nm	Aerosol, O <sub>3</sub> , H <sub>2</sub> O
1022.1 nm	Aerosol, O <sub>3</sub>
1545 nm	Aerosol, CO <sub>2</sub> , H <sub>2</sub> O

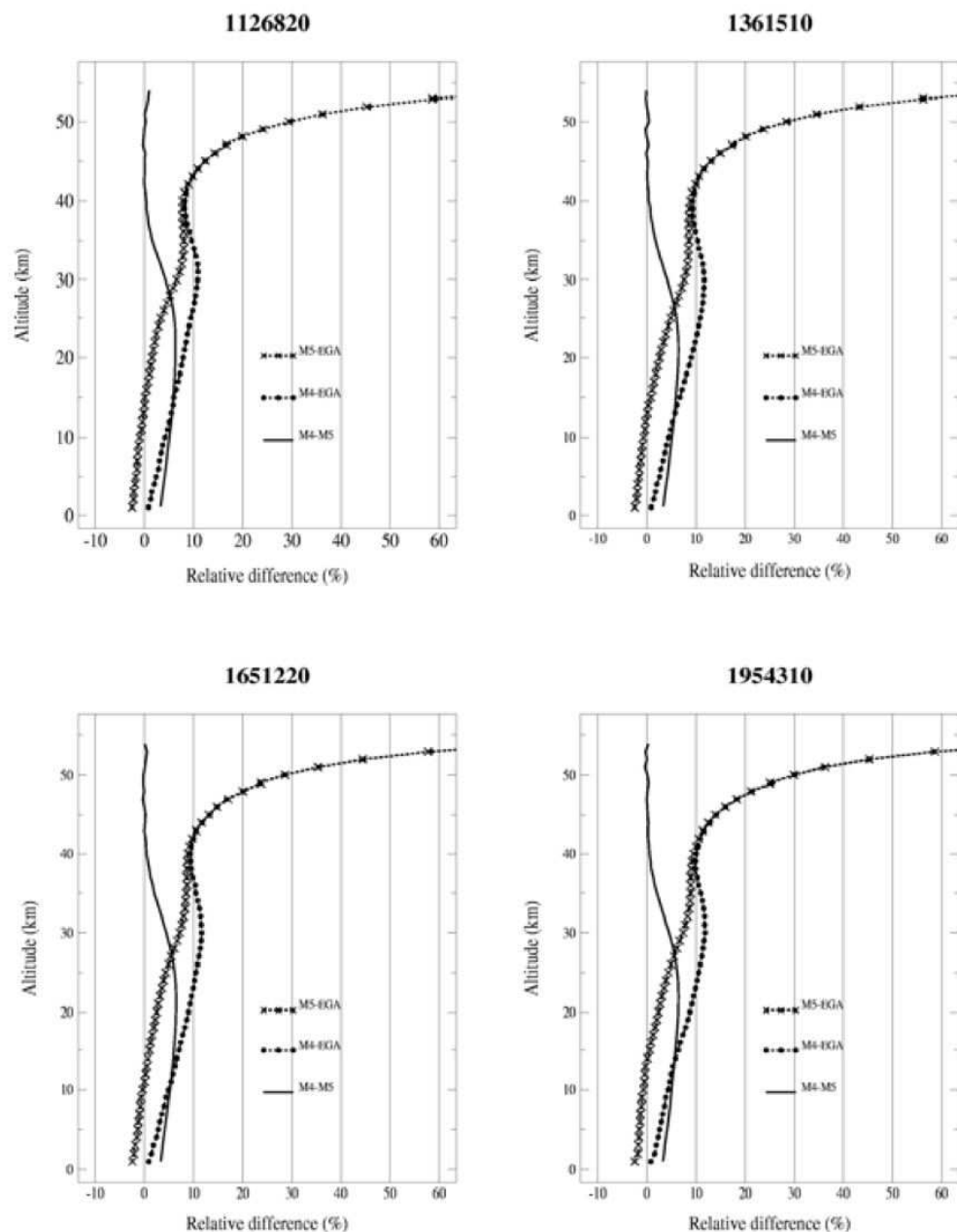
**Table 1.** Species contribution in the SAGE III aerosol channels.



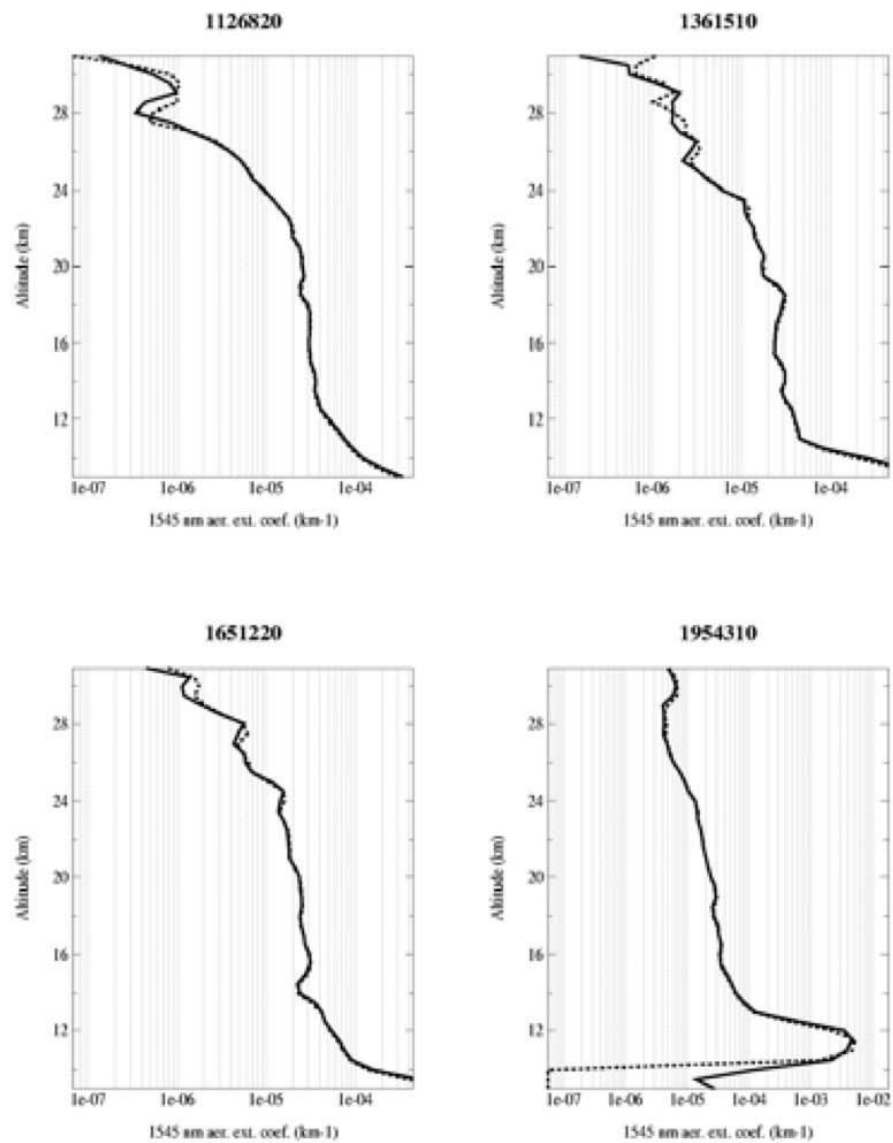
**Figure 1.** Relative contributions of Rayleigh scattering (solid line), CO<sub>2</sub> absorption (dashed line) and aerosol extinction (solid line with square) to the total slant path optical depth for a single SAGE III event (01126820v04).



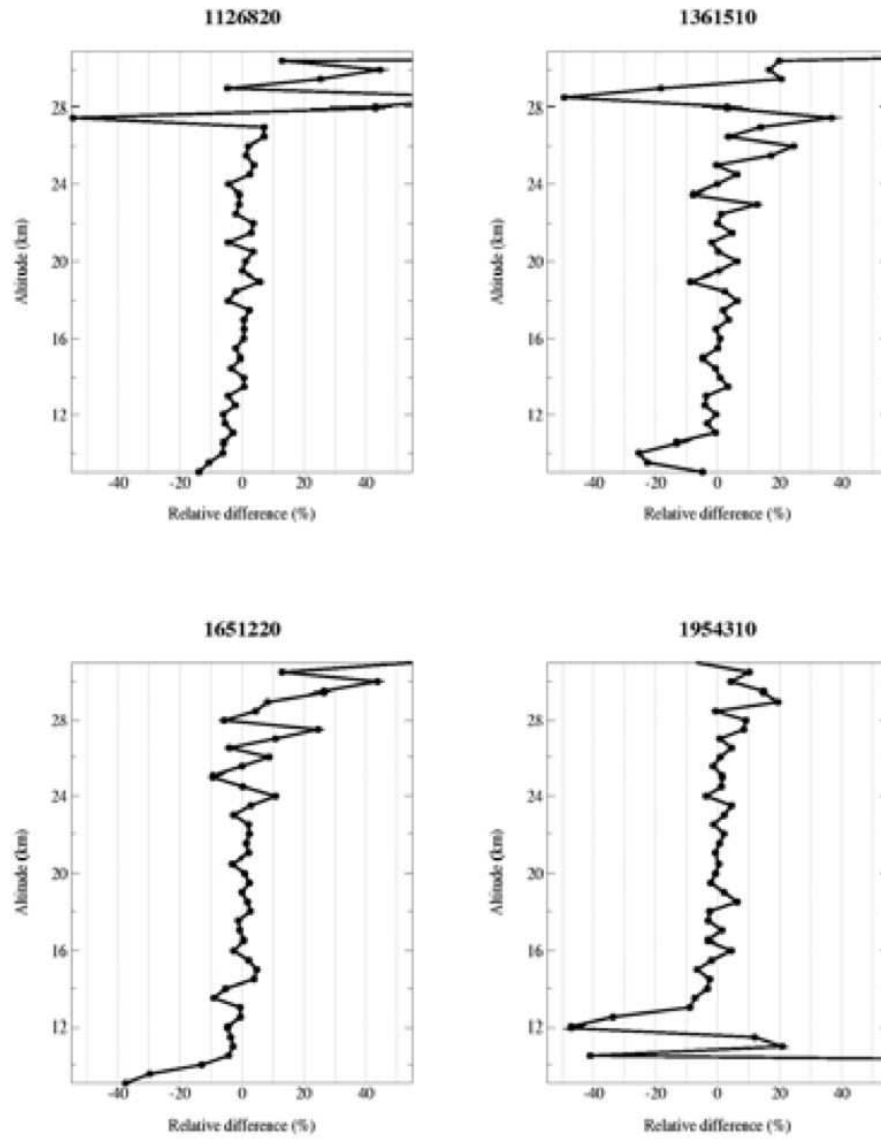
**Figure 2.** Vertical profiles of CO<sub>2</sub> SPOD retrieved using EGA method (solid line), MODTRAN 4 (dotted line) and MODTRAN 5 (dashed line with cross) for 4 SAGE III events. Below 40 km, profiles are so close that they are difficult to distinguish.



**Figure 3.** Vertical profiles of relative differences between CO<sub>2</sub> SPOD calculated using EGA method and CO<sub>2</sub> SPOD calculated using MODTRAN 4 (dotted lines) and MODTRAN 5 (dashed lines with cross) for the same SAGE III events as in Figure 2. Relative differences are computed as  $100 \times (\text{MODTRAN} - \text{EGA}) / \text{mean}$ . The solid lines correspond to the relative differences between MODTRAN 4 and MODTRAN 5 calculated as  $100 \times (\text{MODTRAN 4} - \text{MODTRAN 5}) / \text{mean}$ .

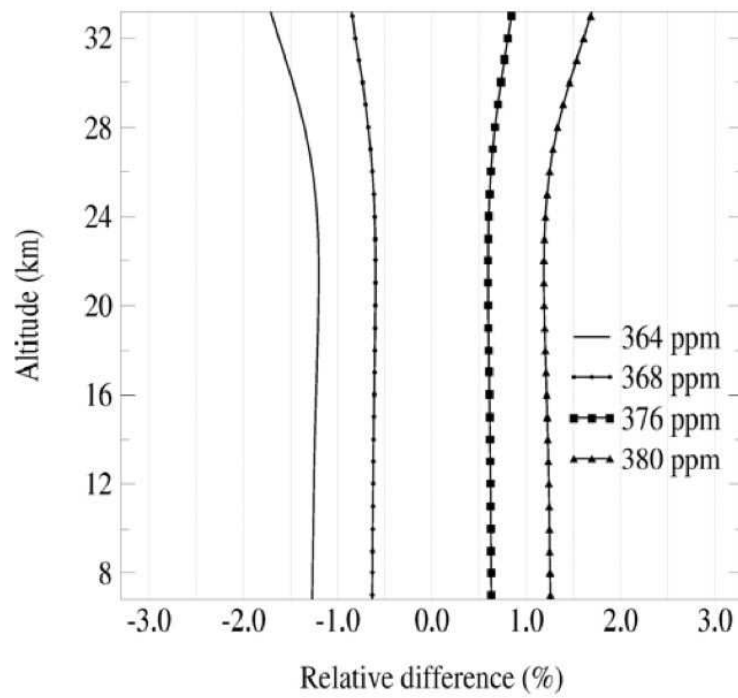


**Figure 4.** SAGE III vertical profiles of aerosol extinction coefficient at 1545 nm retrieved by LaRC algorithm (dashed lines) and by LOA algorithm using MODTRAN 5 to compute the contribution of CO<sub>2</sub> absorption in this channel (solid lines) for the same SAGE III events as in Figures 2-3.

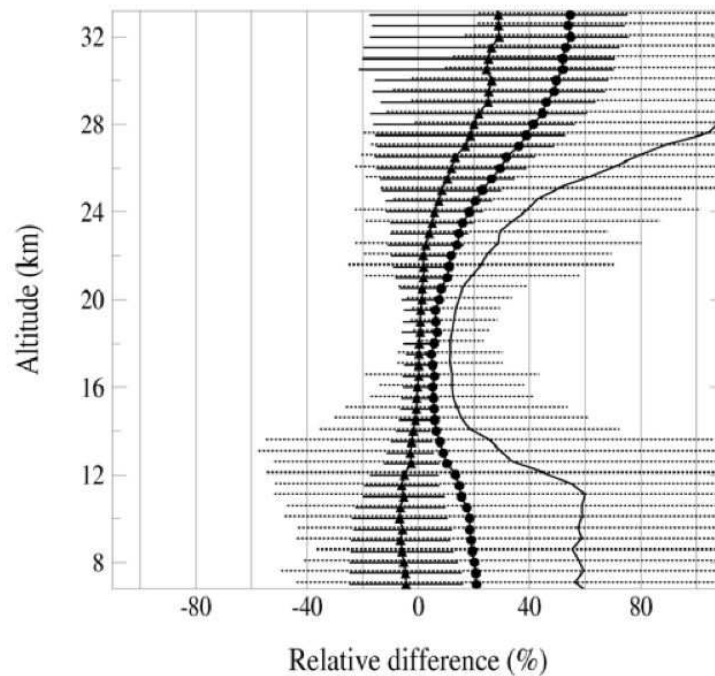


**Figure 5.** Vertical profiles of relative differences between 1545 nm aerosol extinction coefficient retrieved by LaRC and that of calculated using LOA algorithm with MODTRAN5 for CO<sub>2</sub> contribution for the same SAGE III events as in Figures 2-3-4. Relative differences are computed as  $100 * (\beta_{ext}^{LaRC} - \beta_{ext}^{LOA}) / mean$ .





**Figure 6.** Vertical profiles of relative differences between CO<sub>2</sub> SPOD computed using MODTRAN 5 with different CO<sub>2</sub> VMR (see legend) and CO<sub>2</sub> SPOD computed using MODTRAN 5 with 372 ppmv for the same event as in figure 1.

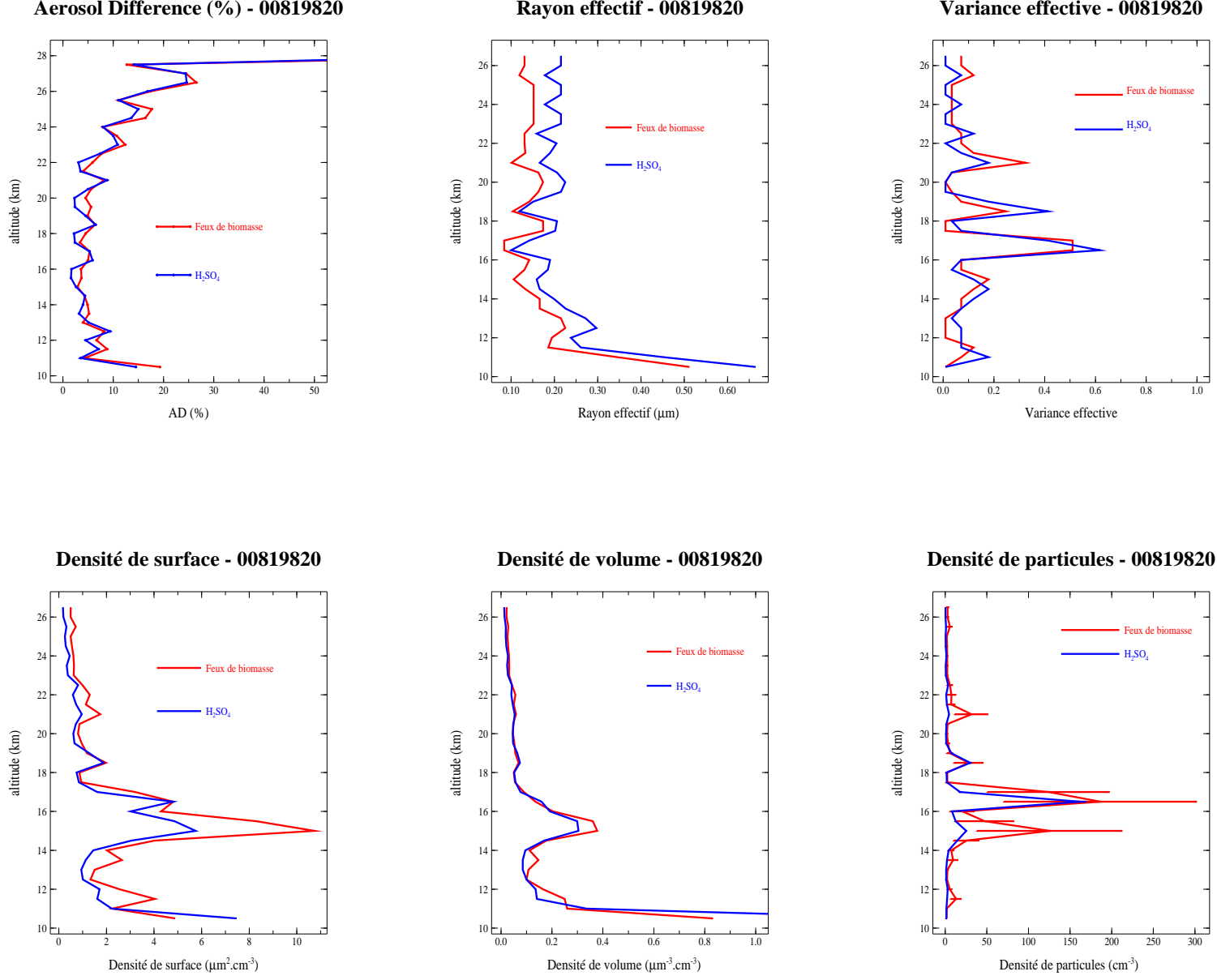


**Figure 7.** Vertical profile of the mean relative difference between SAGE III aerosol extinction coefficients at 1545 nm retrieved by LaRC algorithm and by LOA algorithm using MODTRAN 5 (triangles) for a sample of 2000 events (see text). Dispersion around the mean is represented at each altitude by the horizontal solid line. The black dots represent the vertical profile of root mean square of the relative differences. The solid line represents the mean uncertainties on the LaRC extinction values. The horizontal dashed lines are the dispersion around the mean.

## **ANNEXE B**

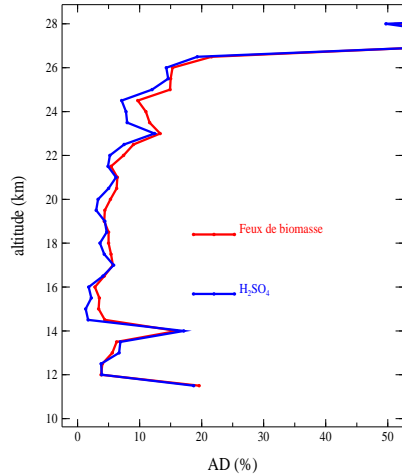
Résultats de la restitution des propriétés  
microphysiques des aérosols pour les 10  
événements SAGE III

Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III 00819820.

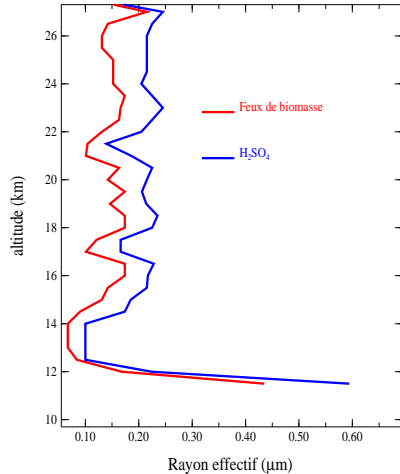


Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III 00821120.

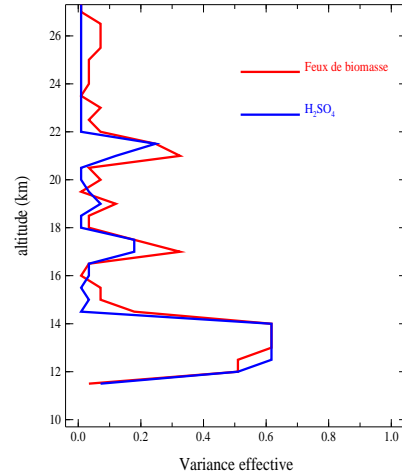
**Aerosol Difference (%) - 00821120**



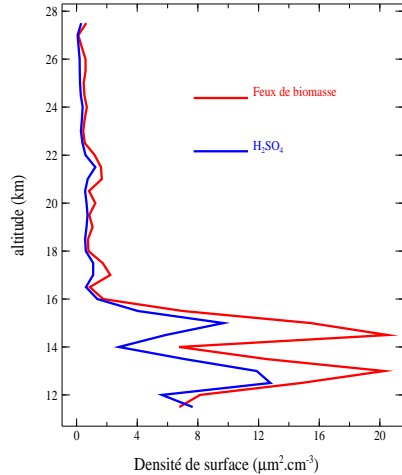
**Rayon effectif - 00821120**



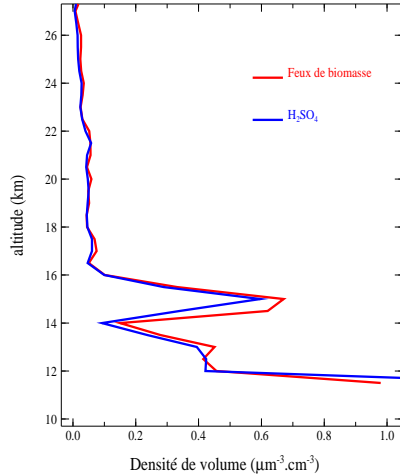
**Variance effective - 00821120**



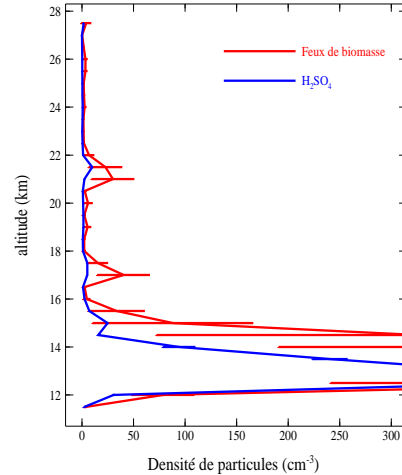
**Densité de surface - 00821120**



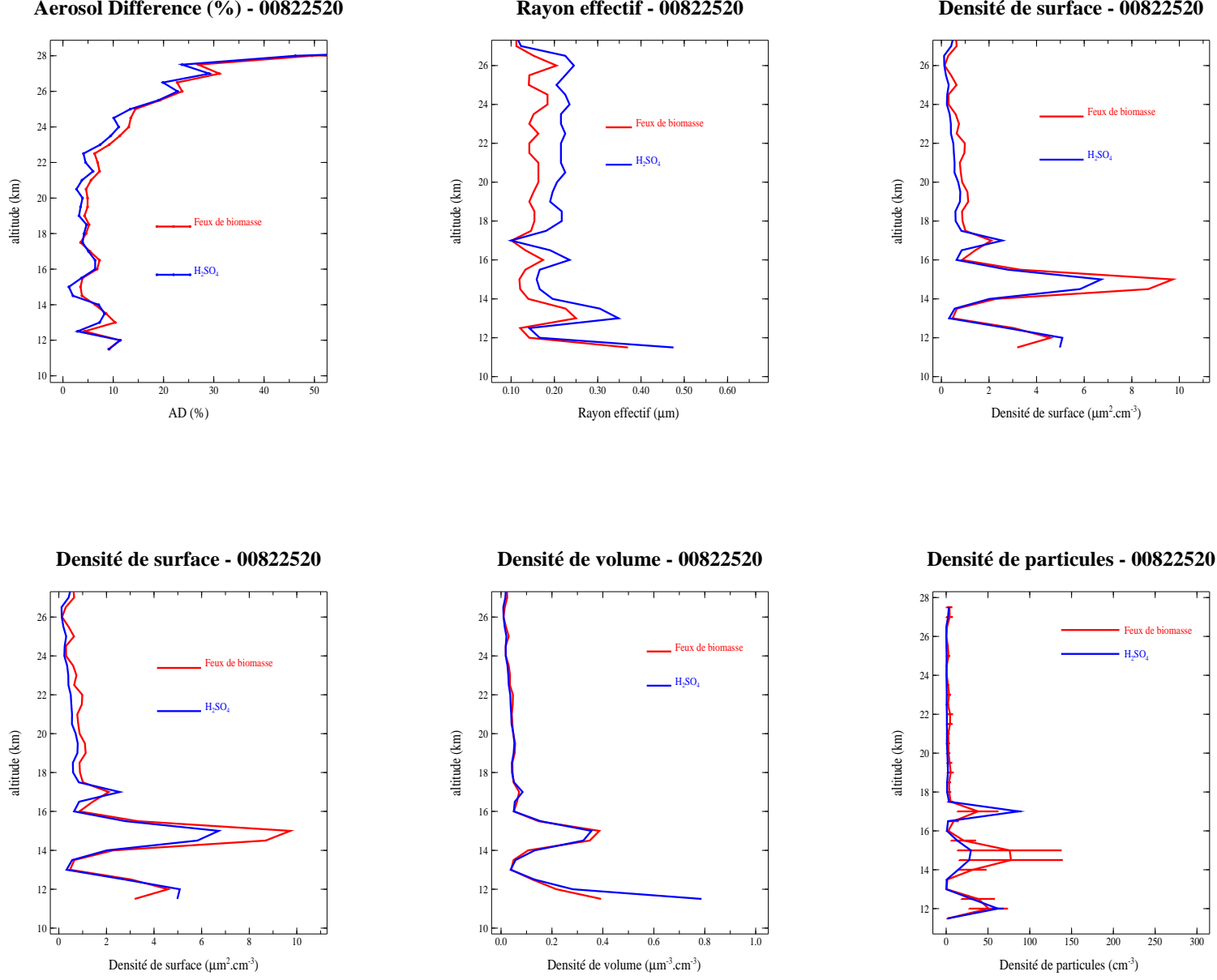
**Densité de volume - 00821120**



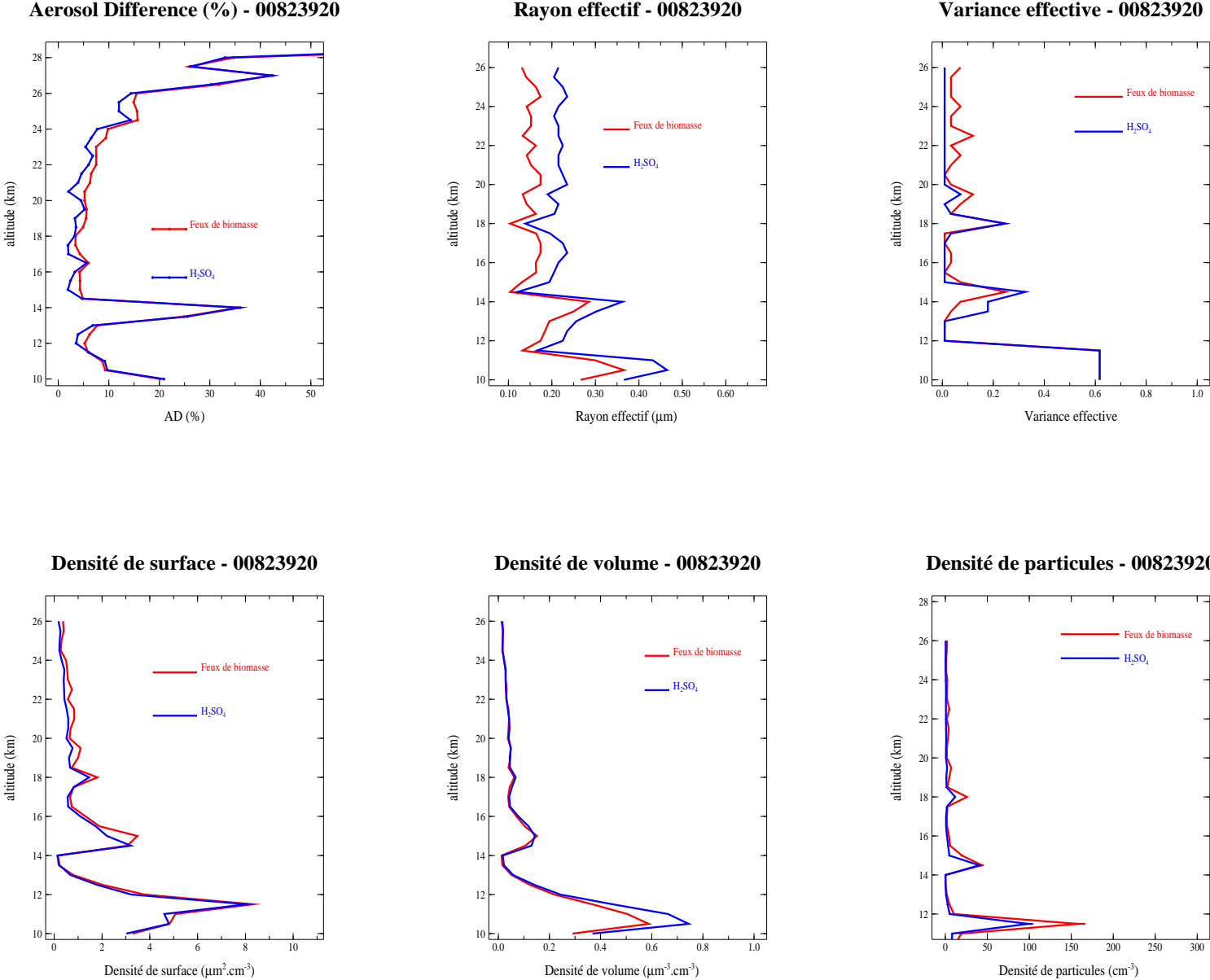
**Densité de particules - 00821120**



Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III 00822520.

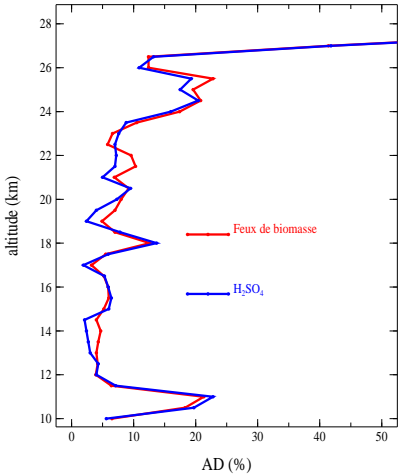


Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III 00823920.

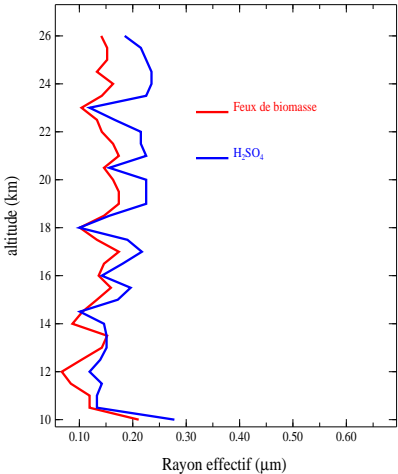


Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III 00826620.

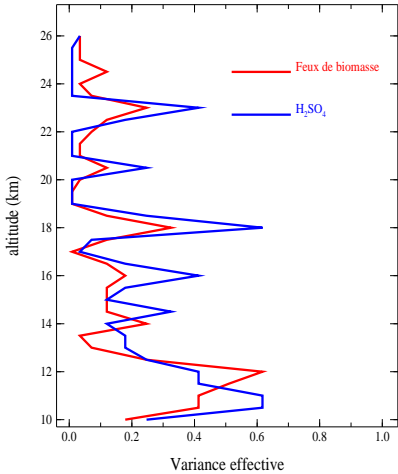
Aerosol Difference (%) - 00826620



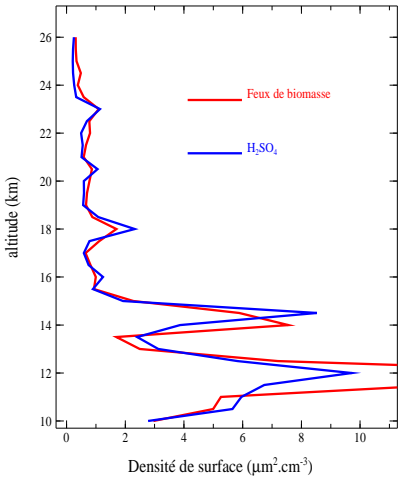
Rayon effectif - 00826620



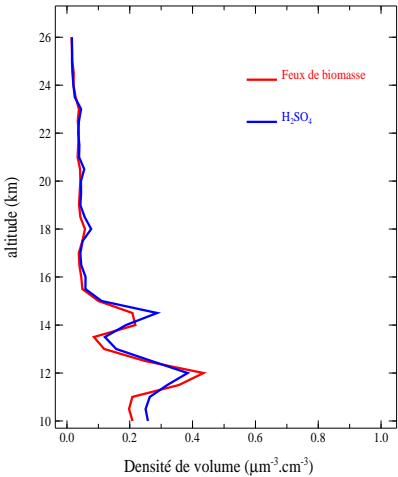
Variance effective - 00826620



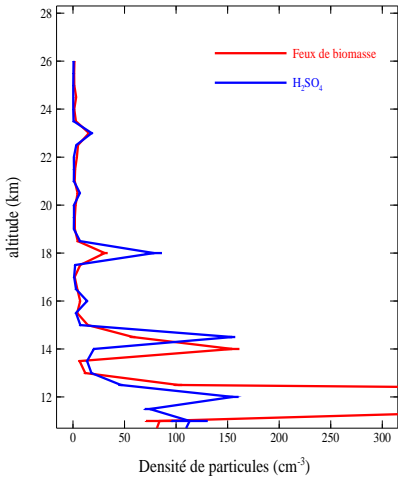
Densité de surface - 00826620



Densité de volume - 00826620

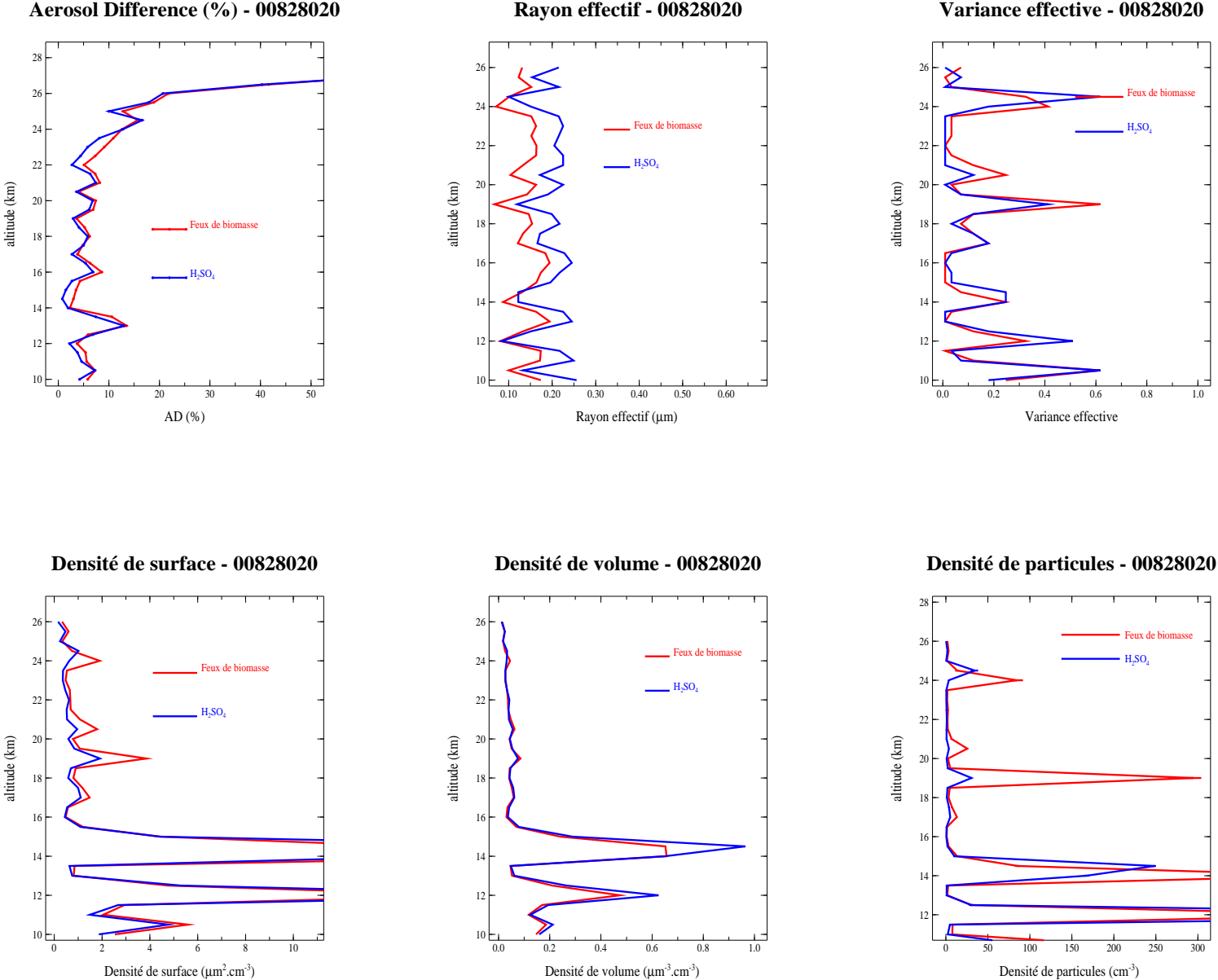


Densité de particules - 00826620



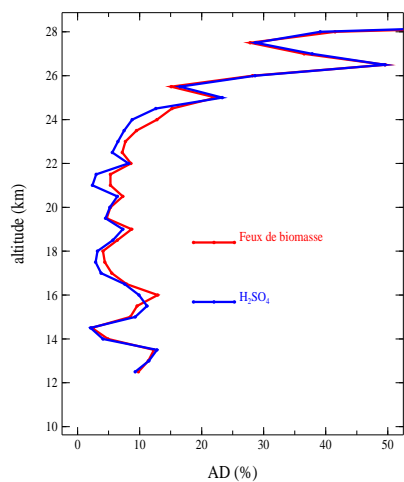


Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III 00828020.

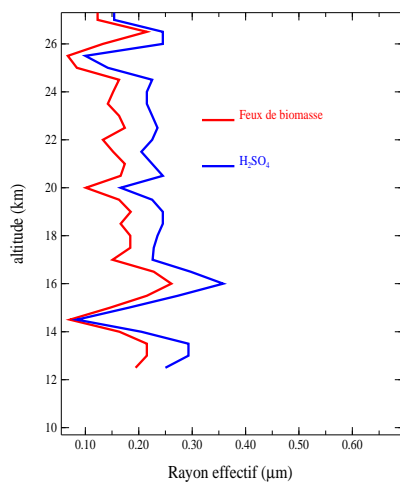


Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III 00830720.

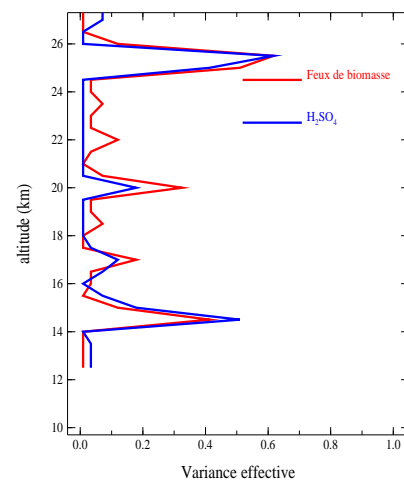
**Aerosol Difference (%) - 00830720**



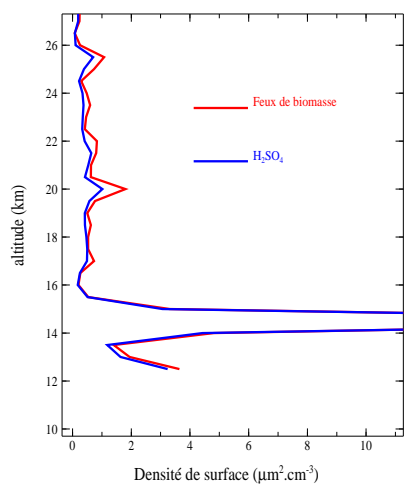
**Rayon effectif - 00830720**



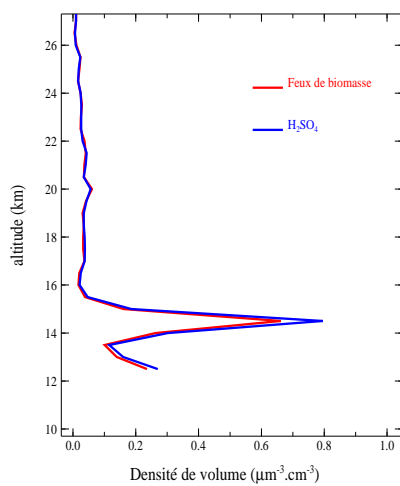
**Variance effective - 00830720**



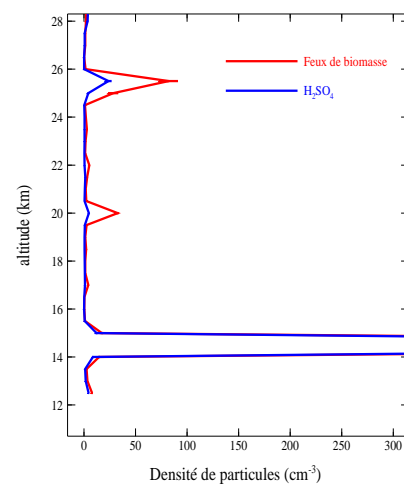
**Densité de surface - 00830720**



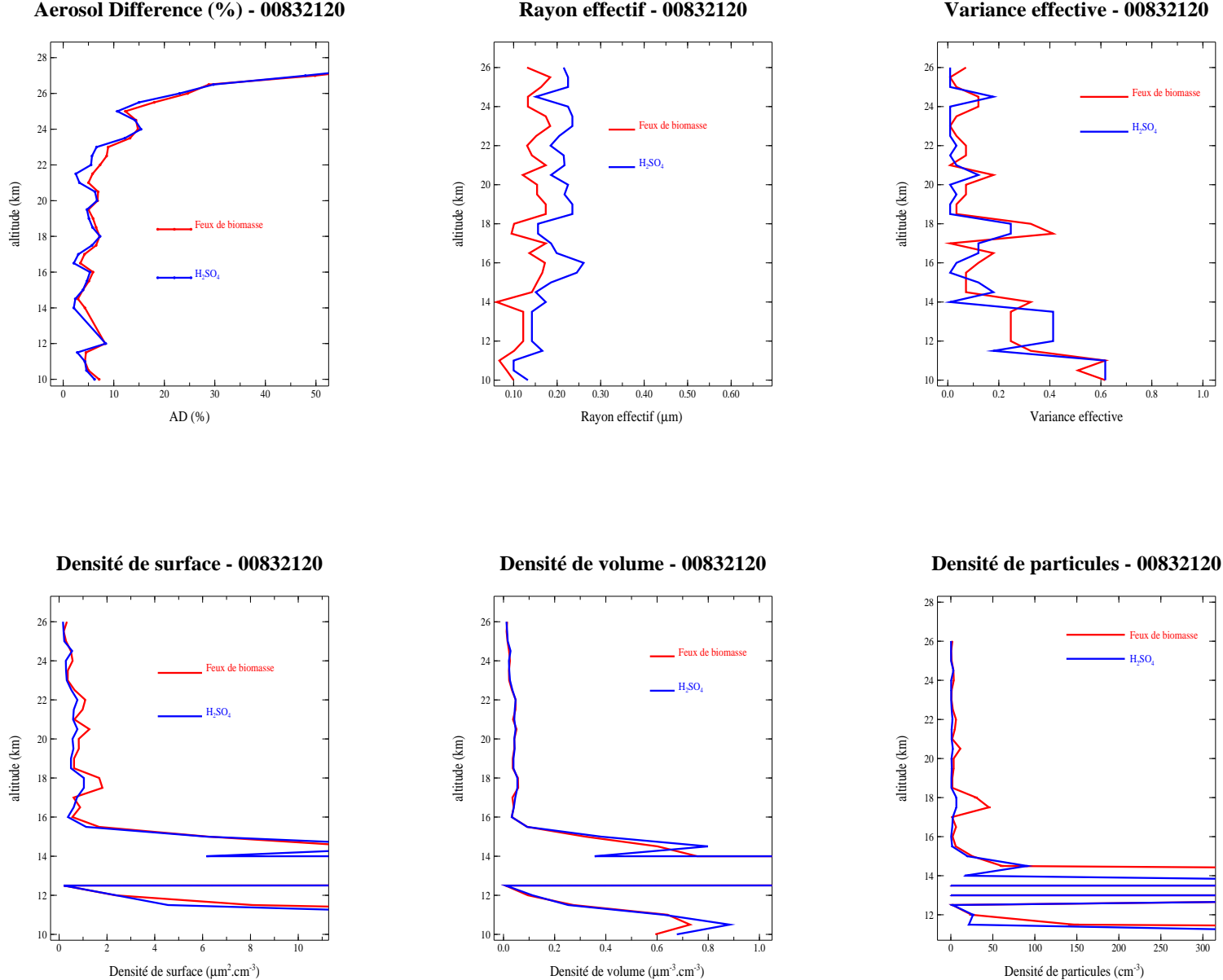
**Densité de volume - 00830720**



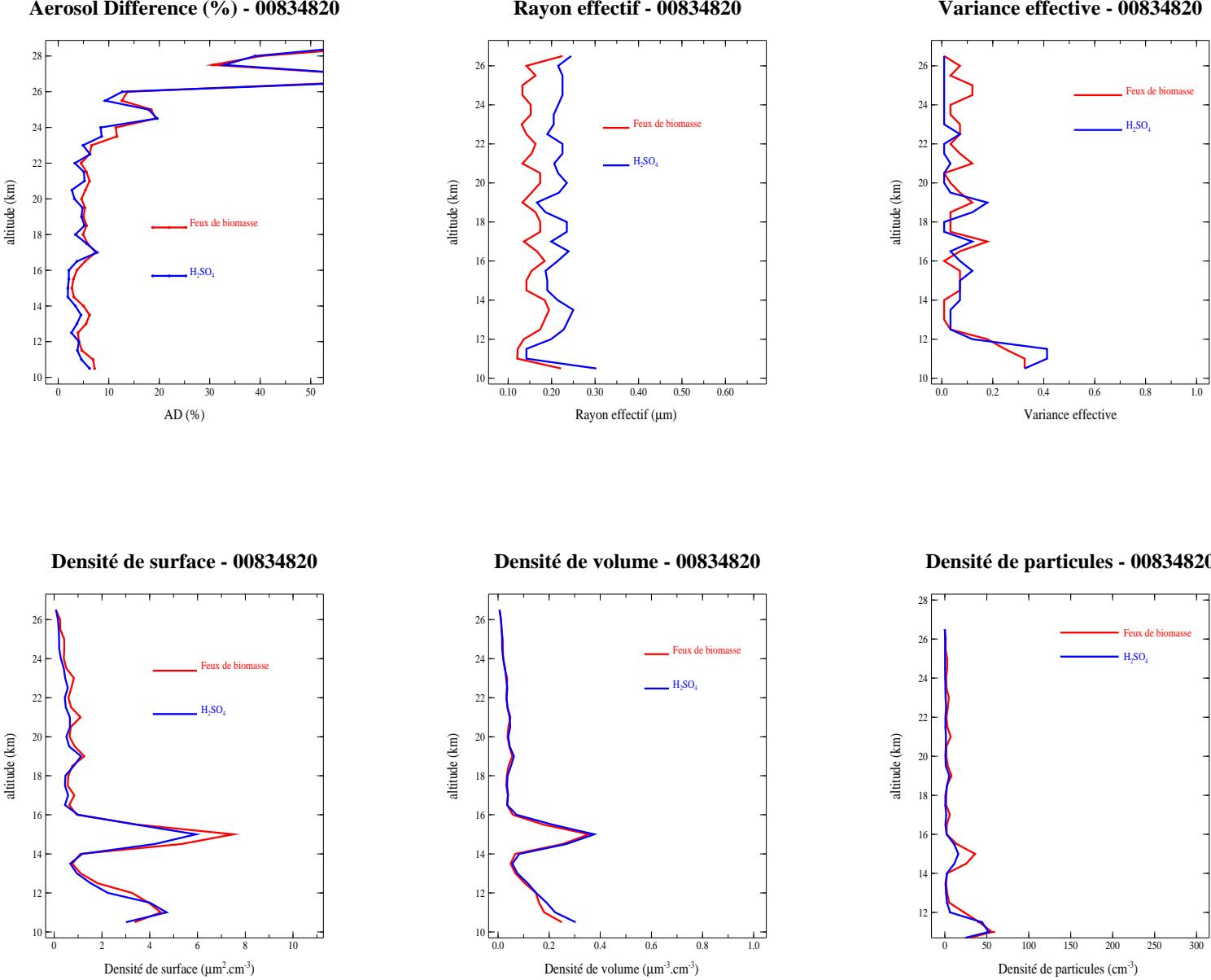
**Densité de particules - 00830720**



Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III 00832120.

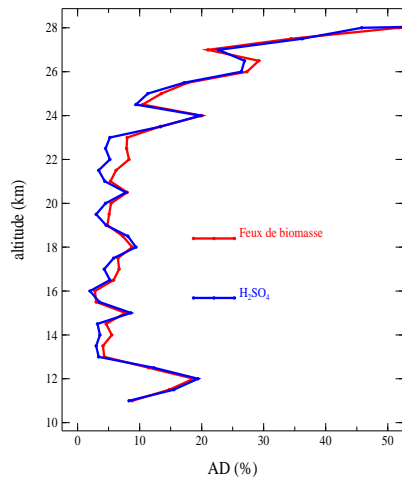


Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III 00834820.

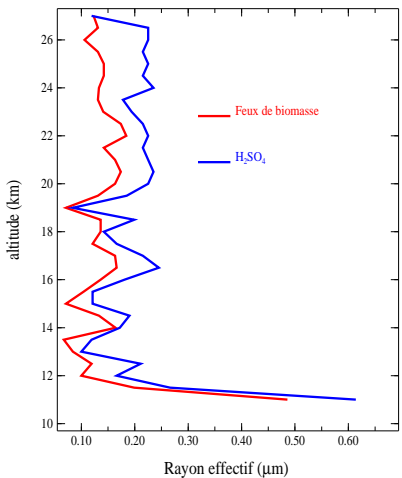


Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III 00843020.

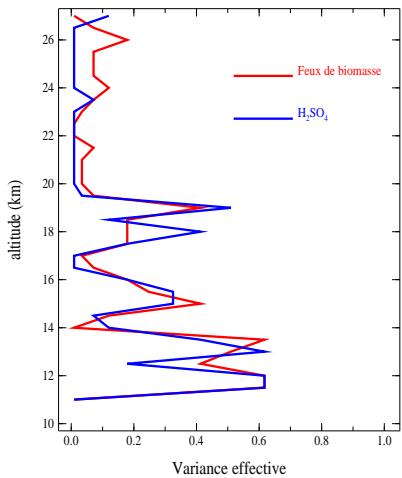
**Aerosol Difference (%) - 00843020**



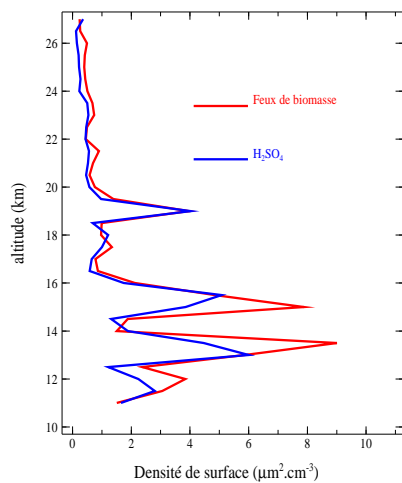
**Rayon effectif - 00843020**



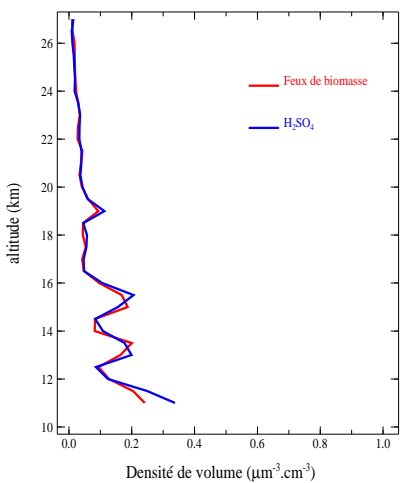
**Variance effective - 00843020**



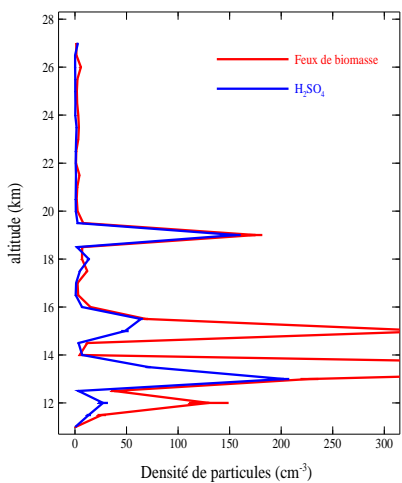
**Densité de surface - 00843020**



**Densité de volume - 00843020**



**Densité de particules - 00843020**







# Table des figures

1.1	Courbe de Keeling . . . . .	14
1.2	Evolution de la température de surface de la Terre . . . . .	15
1.3	Les forçages radiatifs du système climatique . . . . .	17
2.1	Structure verticale de l'atmosphère . . . . .	20
2.2	Distributions verticales des principales espèces gazeuses atmosphériques . .	21
2.3	Evolution de l'épaisseur optique avant et après l'éruption du Pinatubo . . .	25
2.4	Distributions en taille log-normale . . . . .	27
2.5	Circulation de Brewer-Dobson. . . . .	31
2.6	Profil vertical d'ozone . . . . .	33
2.7	Propagation de la lumière suivant une direction $\vec{s}$ . . . . .	38
2.8	Profils lorentzien, Doppler et de Voigt . . . . .	44
2.9	Sections efficaces de l'ozone . . . . .	49
2.10	Différences relatives entre les sections efficaces de l'ozone de Voigt et Bogu- mil et rapport des spectres d'absorption de l'ozone à différentes températures	50
2.11	Sections efficaces du dioxyde d'azote . . . . .	51
2.12	Rapport des trois sections efficaces de $\text{NO}_2$ par rapport à leur moyenne et rapport des spectres d'absorption de $\text{NO}_2$ à différentes températures . . . .	52
2.13	Spectre des raies de $\text{CO}_2$ de 0 à $25 \mu\text{m}$ . . . . .	52
2.14	Spectre des raies de $\text{CO}_2$ de $1.52$ à $1.55 \mu\text{m}$ . . . . .	53
3.1	Stratégies d'observations satellitaires de l'atmosphère . . . . .	56
3.2	Géométrie d'observation des instruments à occultation solaire . . . . .	57
3.3	Couverture géographique annuelle de SAGE III en mode d'occultation so- laire et lunaire . . . . .	59
3.4	Couverture géographique des instruments de ACE . . . . .	63
4.1	Représentation schématique de l'inversion spatiale . . . . .	70
4.2	Contribution relative de l'absorption de $\text{CO}_2$ , de l'extinction des aérosols et de la diffusion Rayleigh dans le canal à $1545 \text{ nm}$ . . . . .	72
4.3	Profils verticaux de l'épaisseur optique d'absorption du $\text{CO}_2$ . . . . .	74
4.4	Profils verticaux des différences relatives entre les profils des épaisseurs op- tiques d'absorption du $\text{CO}_2$ calculées avec la méthode EGA, MODTRAN4 et MODTRAN5. . . . .	75
4.5	Profils verticaux des différences relatives entre les épaisseurs optiques d'ab- sorption de $\text{CO}_2$ avec différents rapports de mélange de $\text{CO}_2$ . . . . .	76
4.6	Profils verticaux des transmissions de la vapeur d'eau à $1545 \text{ nm}$ calculées avec MODTRAN5 . . . . .	77



4.7	Sections efficaces utilisées dans l'algorithme du LOA . . . . .	78
4.8	Profils verticaux du coefficient d'extinction des aérosols et de concentration en NO <sub>2</sub> et O <sub>3</sub> . . . . .	81
4.9	Profils verticaux de concentration en NO <sub>2</sub> avec et sans lissage des transmissions . . . . .	82
4.10	Profils verticaux de concentration en NO <sub>2</sub> avec et sans lissage des transmissions . . . . .	83
4.11	Sensibilité à la température des sections efficaces. . . . .	86
4.12	Profils verticaux des épaisseurs optiques tangentes de diffusion moléculaire calculées selon Bucholtz [1995] le long des lignes de visée d'un événement SAGE III choisi aléatoirement. . . . .	87
4.13	Variations spectrales des rapports entre les épaisseurs optiques Rayleigh calculées avec la formulation de Edlen [1966] (en rouge), de Bucholtz [1995] (en bleu) et de Bodhaine et al. [1999] et la moyenne des épaisseurs optiques Rayleigh calculées avec ces 3 formulations . . . . .	88
4.14	Profils de température associés aux événements 1126820 et 1698710 . . . .	90
4.15	Concentration en ozone et différences relatives pour les événements 1126820 et 1698710 . . . . .	91
4.16	Concentration en NO <sub>2</sub> et différences relatives pour les événements 1126820 et 1698710 . . . . .	92
4.17	Coefficient d'extinction des aérosols à 385 nm et différences relatives pour les événements 1126820 et 1698710 . . . . .	93
4.18	Coefficient d'extinction des aérosols à 448.5 nm et différences relatives pour les événements 1126820 et 1698710 . . . . .	95
4.19	Coefficient d'extinction des aérosols à 520 nm et différences relatives pour les événements 1126820 et 1698710 . . . . .	96
4.20	Coefficient d'extinction des aérosols à 601 nm et différences relatives pour les événements 1126820 et 1698710 . . . . .	97
4.21	Coefficient d'extinction des aérosols à 675 nm et différences relatives pour les événements 1126820 et 1698710 . . . . .	98
4.22	Coefficient d'extinction des aérosols à 755 nm et différences relatives pour les événements 1126820 et 1698710 . . . . .	99
4.23	Coefficient d'extinction des aérosols à 869 nm et différences relatives pour les événements 1126820 et 1698710 . . . . .	100
4.24	Coefficient d'extinction des aérosols à 1022 nm et différences relatives pour les événements 1126820 et 1698710 . . . . .	101
4.25	Coefficient d'extinction des aérosols à 1545 nm et différences relatives pour les événements 1126820 et 1698710 . . . . .	102
4.26	Moyennes et RMS des différences relatives pour O <sub>3</sub> LOA et LaRC . . . .	104
4.27	Moyennes et RMS des différences relatives pour NO <sub>2</sub> LOA et LaRC . . . .	105
4.28	Moyennes et RMS des différences relatives pour les aérosols à 385 nm LOA et LaRC . . . . .	106
4.29	Moyennes et RMS des différences relatives pour les aérosols à 448.5 nm LOA et LaRC . . . . .	107
4.30	Moyennes et RMS des différences relatives pour les aérosols à 520 nm LOA et LaRC . . . . .	107

4.31	Moyennes et RMS des différences relatives pour les aérosols à 601 nm LOA et LaRC . . . . .	108
4.32	Moyennes et RMS des différences relatives pour les aérosols à 675 nm LOA et LaRC . . . . .	108
4.33	Moyennes et RMS des différences relatives pour les aérosols à 755 nm LOA et LaRC . . . . .	109
4.34	Moyennes et RMS des différences relatives pour les aérosols à 869 nm LOA et LaRC . . . . .	110
4.35	Moyennes et RMS des différences relatives pour les aérosols à 1022 nm LOA et LaRC . . . . .	110
4.36	Moyennes et RMS des différences relatives pour les aérosols à 1545 nm LOA et LaRC . . . . .	111
4.37	Profils de température associés aux événements 125220 et 237210 . . . . .	113
4.38	Profils verticaux de concentration en ozone et différences relatives associés pour les événements 125220 et 237210 . . . . .	114
4.39	Profils verticaux de concentration en NO <sub>2</sub> et différences relatives associés pour les événements 125220 et 237210 . . . . .	115
4.40	Profils verticaux des moyennes et RMS des différences relatives entre les concentrations en ozone du LOA et du SPbSU . . . . .	116
4.41	Profils verticaux des moyennes des différences relatives entre les concentrations en dioxyde d'azote du LOA et du SPbSU . . . . .	117
4.42	Distribution spatiale des mesures de SAGE III et de POAM III . . . . .	119
4.43	Profils verticaux des concentrations en O <sub>3</sub> et en NO <sub>2</sub> et des différences relatives pour la meilleurs coïncidence spatio-temporelles SAGE III / POAM III . . . . .	121
4.44	Profils verticaux des coefficients d'extinction des aérosols et des différences relatives pour la meilleurs coïncidence spatio-temporelles SAGE III / POAM III . . . . .	122
4.45	Profils verticaux des moyennes et des RMS des différences relatives entre les concentrations en O <sub>3</sub> de SAGE III (LOA) et de POAM III . . . . .	124
4.46	Profils verticaux des moyennes et des RMS des différences relatives entre les coefficients d'extinction aérosols SAGE III et POAM III . . . . .	126
4.47	Distribution spatiale des coïncidences spatio-temporelles entre les mesures de SAGE II et de SAGE III entre avril 2002 et juin 2005 . . . . .	128
4.48	Profils verticaux des concentrations en O <sub>3</sub> et en NO <sub>2</sub> et des différences relatives pour la meilleurs coïncidence spatio-temporelles SAGE III / SAGE II129	
4.49	Profils verticaux des coefficients d'extinction des aérosols et des différences relatives pour la meilleurs coïncidence spatio-temporelles SAGE III / SAGE II130	
4.50	Profils verticaux des moyennes et des RMS des différences relatives entre les concentrations en O <sub>3</sub> et en NO <sub>2</sub> de SAGE III et de SAGE II . . . . .	132
4.51	Profils verticaux des coefficients d'extinction des aérosols et des différences relatives pour la meilleurs coïncidence spatio-temporelles SAGE III / SAGE II133	
4.52	SPIRALE : Processus de restitution de la concentration en O <sub>3</sub> et en CO . .	136
4.53	Température potentielle en fonction de l'altitude pendant l'ascension de SPIRALE . . . . .	137
4.54	Cartes de vorticité potentielle pour différentes altitudes de SPIRALE . . .	138
4.55	Cycle diurne du dioxyde d'azote . . . . .	139

4.56	Profils verticaux des rapports de mélange d'ozone mesurés par SPIRALE et par les événements SAGE III et le profil des différences relatives associées	140
4.57	Profils verticaux des rapports de mélange de dioxyde d'azote mesurés par SPIRALE et par les événements SAGE III et le profil des différences relatives associées . . . . .	141
5.1	Cartes des provinces du Canada . . . . .	146
5.2	Cartes d'anomalies de précipitations et de températures . . . . .	147
5.3	Cartes des feux de forêt en Colombie Britannique pendant l'été 2003. . . .	148
5.4	Feux de forêt vus par MODIS. . . . .	149
5.5	Feux de forêt vus par TOMS. . . . .	150
5.6	Profils verticaux des coefficients d'extinction des aérosols dans l'ouest du Canada durant le mois d'août 2003. . . . .	152
5.7	Profils verticaux du flag présence de nuages dans l'ouest du Canada durant le mois d'août 2003. . . . .	153
5.8	Rétrotrajectoires issues de SAGE III (19 août) et altitude des aérosols d'après POLDER-2 (18 août 2003) . . . . .	155
5.9	Ajustement des rapports d'extinction entre la mesure SAGE III n°10 et la modélisation . . . . .	157
5.10	Profils verticaux des propriétés microphysiques des aérosols issues de la mesure SAGE III n°10 . . . . .	160
6.1	Cartes de vorticité potentielle correspondantes aux moments de la mesure de SPIRALE et de celle de ACE . . . . .	163
6.2	Profils verticaux des concentrations en aérosol dans trois gammes de taille détectées par le compteur de particules STAC . . . . .	164
6.3	profil vertical des températures enregistrées pendant le vol de SPIRALE et rétrotrajectoires issus de la mesure de SPIRALE à 20, 21 et 22 km . . . . .	165
6.4	profils verticaux des rapports de mélange en O <sub>3</sub> FTS et SPIRALE . . . . .	166
6.5	profils verticaux des rapports de mélange en NO <sub>2</sub> FTS et SPIRALE . . . . .	167
6.6	profils verticaux des rapports de mélange en N <sub>2</sub> O FTS et SPIRALE . . . . .	168
6.7	Identique à la figure 6.6 mais pour HNO <sub>3</sub> . . . . .	169
6.8	Identique à la figure 6.6 mais pour HCl . . . . .	170
6.9	Identique à la figure 6.6 mais pour CH <sub>4</sub> . . . . .	171
6.10	Distribution spatiale des coïncidences ACE/SAGEIII . . . . .	172
6.11	Comparaison SAGE III / FTS pour l'ozone . . . . .	173
6.12	Comparaison SAGE III / FTS pour le dioxyde d'azote . . . . .	174
6.13	Comparaison FTS / MAESTRO pour l'ozone et le dioxyde d'azote . . . . .	176
6.14	Comparaison ozone SPIRALE/MAESTRO . . . . .	177
6.15	Comparaison NO <sub>2</sub> SPIRALE/MAESTRO . . . . .	177
6.16	Comparaison ozone SAGE III / MAESTRO-VIS . . . . .	178
6.17	Comparaison ozone SAGE III / MAESTRO-UV . . . . .	179
6.18	Comparaison ozone SAGE III / MAESTRO . . . . .	180
6.19	Comparaison aérosol ACE-Imager / SAGE II . . . . .	183
6.20	Comparaison aérosol ACE-Imager / SAGE III . . . . .	185
	Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III 00819820 . . . . .	221

Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III	
00821120 . . . . .	222
Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III	
00822520 . . . . .	223
Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III	
00823920 . . . . .	224
Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III	
00826620 . . . . .	225
Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III	
00828020 . . . . .	226
Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III	
00830720 . . . . .	227
Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III	
00832120 . . . . .	228
Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III	
00834820 . . . . .	229
Propriétés microphysiques des aérosols déduites de la mesure SAGE III	
00843020 . . . . .	230



# Liste des tableaux

2.1	Composition chimique de l'atmosphère actuelle . . . . .	20
2.2	Estimation des émissions annuelles globales des principaux aérosols . . . . .	22
2.3	Réactions chimiques principales des espèces soufrées . . . . .	24
2.4	Caractéristiques des différents jeux de sections efficaces de l'ozone . . . . .	49
2.5	Caractéristiques des différents jeux de sections efficaces du dioxyde d'azote . . . . .	51
3.1	Instruments d'occultation solaire SAM II et SAGE . . . . .	58
3.2	Canaux SAGE III en mode d'occultation solaire et lunaire . . . . .	60
3.3	Canaux POAM II et POAM III . . . . .	62
4.1	Canaux SAGE III utilisés dans l'algorithme du LOA . . . . .	69
4.2	Température des jeux de sections efficaces utilisés . . . . .	84
4.3	Détail des événements SAGE III et POAM III les plus proches spatialement et temporellement . . . . .	120
4.4	Liste des espèces mesurées lors du vol de SPIRALE à Kiruna en janvier 2003	135
4.5	Événements SAGE III le 21 janvier 2003 entre 16h et 23h30 dans l'hémisphère nord . . . . .	137
4.6	Coïncidences iso-PV, temporelle et spatiale entre SAGE III et les rétrotrajectoires issues du vol de SPIRALE. . . . .	139
4.7	Résumé des comparaisons SAGE III (LOA) / autres produits . . . . .	142
5.1	Liste des événements SAGE III dans l'ouest canadien en août 2003 présentant une anomalie d'extinction aérosols dans la basse stratosphère. . . . .	150
5.2	Indices de réfraction des aérosols sulfatés, des aérosols de brûlis et des aérosols de suie . . . . .	156
6.1	Résumé des comparaisons ozone entre FTS, MAESTRO, SAGE III et SPIRALE . . . . .	186
6.2	Résumé des comparaisons NO <sub>2</sub> entre FTS, MAESTRO, SAGE III et SPIRALE . . . . .	187
6.3	Résumé des comparaisons aérosols entre Imager, SAGE II et SAGE III . . . . .	187



# Bibliographie

- M. Ackerman, C. Brogniez, B.S. Diallo, G. Fiocco, M. Gobbi, M. Herman, M. Jager, J. Lenoble, C. Lippens, G. Megie, J. Pelon, R. Reiter, and Santer R. European validation of SAGE II aerosol profiles. *J. Geophys. Res.*, 94(D6), 8399–8411, 1989.
- G.P. Anderson, F.X. Kneizys, J.H. Chetwynd, J. Wang, M.L. Hoke, L.S. Rothman, L.M. Kimball, R.A. McClatchey, E.P. Shettle, S.A. Clough, W.O. Wallery, L.W. Abreu, and J.E.A. Selby. FASCODE/MODTRAN/LOWTRAN : Past/Present/Future. In *18th Annual review conference on atmospheric transmission models*, 1995.
- A. Angström. On the atmospheric transmission of sun radiation and on dust in the air. *Geogr. Ann. H.*, pages 155 – 166, 1929.
- C. Appenzeller, J.R. Holton, and K.H. Rosenlof. Seasonal variation of mass transport across the tropopause. *J. Geophys. Res.*, 101(D10), 15071–15078, 1996.
- S.A. Arrhénius. On the influence of carbonic acid in the air upon the temperature of the ground. *The London, Edimburgh and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science*, 41, 237–236, 1896.
- M.P. Baldwin, M. Dameris, and T.G. Shepherd. How Will The Stratosphere Affect Climate Change? *Science*, 316, 1576–1577, 2007.
- D. R. Bates and M. Nicolet. Atmospheric hydrogen. *Publ. Astron. Soc. Pac.*, 62, 106–110, 1950.
- A. Bazureau. *Préparation de l'inversion des mesures de transmission de l'expérience spatiale SAGE III : Mise en place et étude des algorithmes d'inversion. Application aux mesures des expériences ballon AMON et SALOMON*. PhD thesis, Université de Lille 1, 2001.
- A. Berger. Le passé climatique de la terre, clef du futur. *Ciel et espace*, 112(1), 3–14, 1996.
- A. Berk, G.P. Anderson, L.S. Bernstein, P.K. Acharya, H. Dothe, M.W. Matthew, S.M. Adler-Golden, J.H. Chetwynd, S.C. Richtsmeier, B. Pukall, C.L. Allred, L.S. Jeong, and M.L. Hoke. MODTRAN4 Radiative transfer modelling for atmospheric correction. In *Proc. of SPIE : Optical spectroscopic techniques and instrumentation for atmospheric and space research*, volume 3756, 1999.
- A. Berk, G.P. Anderson, P.K. Acharya, L.S. Bernstein, L. Muratov, J. Lee, M. Fox, J.H. Adler-Golden, S.M. and Chetwynd, M.L. Hoke, R.B. Lockwood, T.W. Cooley, and



- J.A. Gardner. MODTRAN5 : A reformulated atmospheric band model with auxiliary species and practical multiple scattering options. In *Proc. of SPIE : Multispectral and hyperspectral remote sensing instruments and applications*, volume 5655, 2005.
- P. F. Bernath, C. T. McElroy, M.C. Abrams, C.D. Boone, M. Butler, C. Camy-Peyret, M. Carleer, C. Clerbaux, P.-F. Coheur, R. Colin, P. DeCola, M. DeMazière, J. R. Drummond, D. Dufour, W.F.J. Evans, H. Fast, D. Fussen, K. Gilbert, D.E. Jennings, E.J. Llewellyn, R.P. Lowe, E. Mahieu, J.C. McConell, M. McHugh, S.D. McLeod, R. Michaud, C. Midwinter, R. Nassar, F. Nichitui, C. Nowlan, C.P. Rinsland, Y.J. Rochon, N. Rowlands, K. Semeniuk, P. Simon, R. Skelton, J.J. Sloan, M.A. Soucy, K. Strong, P. Tremblay, D. Turnbull, K.A. Walker, I. Walkty, D.A. Wardle, V. Wehrle, R. Zander, and J. Zou. Atmospheric Chemistry Experiment (ACE) : Mission overview. *Geophys. Res. Lett.*, 2005.
- G. Berthet, J.-B. Renard, V. Catoire, M. Chartier, C. Robert, N. Huret, F. Coquelet, Q. Bourgeois, E.D. Rivière, B. Barret, F. Lefèvre, and A. Hauchecorne. Remote sensing measurements in the polar vortex : comparison to in situ observations and implications for the simultaneous retrievals and analysis of the NO<sub>2</sub> and OClO species. *J. Geophys. Res.*, 112, 2007.
- S. Bethan, G. Vaughan, and S.J. Reid. A comparison of ozone and thermal tropopause heights and the impact of tropopause definition on quantifying the ozone content of the tropopause. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 122, 929–944, 1996.
- G.J.S. Bluth, S.D. Doiron, C.C. Schnetzler, A.J. Krueger, and L.S. Walter. Global tracking of the SO<sub>2</sub> cloud from the June, 1991, Mount Pinatubo eruptions. *Geophys. Res. Lett.*, 19(2), 151–154, 1992.
- B.A. Bodhaine, N.B. Wood, E.G. Dutton, and J.R. Slusser. On Rayleigh optical depth calculations. *J. Atmos. and Ocean. Tech.*, 16, 1854–1861, 1999.
- K. Bogumil, J. Orphal, T. Homann, S. Voigt, P. Spietz, O.C. Fleischmann, A. Vogel, M. Hartmann, H. Bovensmann, J. Frerick, and J.P. Burrows. Measurements of molecular absorption spectra with the SCIAMACHY pre-flight model : instrument characterization and reference data for atmospheric remote-sensing in the 230–2380 nm region. *J. Photochem. Photobiol.*, 157, 167–184, 2003.
- C. D. Boone, R. Nassar, V Walker, Y. Rochon, S.D. McLeod, C.P. Rinsland, and P.F. Bernath. Retrievals for the Atmospheric Chemistry Experiment Fourier-transform spectrometer. *Appl. Opt.*, 44(33), 7218–7231, 2005.
- A.W. Brewer. Evidence for a world circulation provided by the measurements of helium and water vapor distribution in the stratosphere. *Quart. J. Roy. Meteor. Soc.*, 75, 351–363, 1949.
- C. Brogniez and J. Lenoble. *Size distribution of stratospheric aerosol from SAGE II multiwavelength extinctions*, chapter Aerosols and Climate, pages 305 – 311. A. Deepak Publishing, 1988.

- C. Brogniez, L. Cazier, R. Ramanananahérisoa, and J. Lenoble. Climatology of stratospheric aerosols from SAGE II and POAM II satellite measurements. Evaluation of their impact on radiative forcing. In *Reduction of errors in aerosol forcing of climate*. France, CNES, 1999.
- C. Brogniez, A. Bazureau, J. Lenoble, and W.P. Chu. SAGE III measurements : a study on the retrieval of ozone, nitrogen dioxide and aerosol extinction coefficients. *J. Geophys. Res.*, 107(D24), 4758, 2002.
- A. Bucholtz. Rayleigh-scattering calculations for the terrestrial atmosphere. *Appl. Opt.*, 34, 2765–2773, 1995.
- J.P. Burrows, A. Dehn, B. Deters, S. Himmelmann, A. Richter, S. Voigt, and J. Orphal. Atmospheric remote sensing reference data from GOME - 1 : Temperature dependent absorption cross section of NO<sub>2</sub> in the 231 - 794 nm range. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 60(6), 1025–1031, 1998.
- J.P. Burrows, A. Richter, A. Dehn, S. Himmelmann, S. Voigt, and J. Orphal. Atmospheric remote sensing reference data from GOME - 2 : Temperature dependent absorption cross section of O<sub>3</sub> in the 231 - 794 nm range. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 61, 509–517, 1999.
- M.T. Chahine. A general relaxation method for inverse solution of the full radiative transfert equation. *J. Atmos. Sci.*, 29, 741–747, 1972.
- S. Chapman. On ozone and atomic oxygen in the upper atmosphere. *Philos. Mag.*, pages 369–383, 1930.
- P. Chazette, C. David, J. Lefrère, S. Godin, J. Pelon, and G. Mégie. Comparative lidar study of the optical, geometrical and dynamical properties of stratospheric post-volcanic aerosol, following the eruptions of El Chichòn and Mount Pinatubo. *J. Geophys. Res.*, 100(D11), 23195 – 23207, 1995.
- W.P. Chu, M.P. McCormick, J. Lenoble, C. Brogniez, and P. Pruvost. SAGE II inversion algorithm. *J. Geophys. Res.*, D6, 8339–8351, 1989.
- S.A. Clough, M.W. Shephard, E.J. Mlawer, J.S. Delamere, M.J. Iacono, K. Cady-Pereira, S. Boukabara, and P.D. Brown. Atmospheric radiative tranfer modelling : a summary of the AER codes. *J. Quant. Spectrosc. Radiative Trans.*, 91, 233–244, 2005.
- M.T. Coffey. Observations of the impact of volcanic activity on stratospheric chemistry. *J. Geophys. Res.*, 101(D3), 6767–6780, 1996.
- P.J. Crutzen. The influence of nitrogen oxide on the atmospheric ozone content. *Q. J. R. Meteorol. Soc.*, 96, 320–327, 1970.
- D. Cunnold and M. McCormick. SAGE III Algorithm Theoretical Basis Document (ATBD) Transmission Level 1B Products. Technical report, NASA, 2002.
- D.M. Cunnold, W.P. Chu, R.A. Barnes, M.P. McCormick, and R.E. Veiga. Validation of SAGE II ozone measurements. *J. Geophys. Res.*, 94(D6), 8447–8460, 1989.

- D.M. Cunnold, J.M. Zawodny, W.P. Chu, J.P. Pommereau, F. Goutail, J. Lenoble, M.P. McCormick, R.E. Veiga, D. Murcray, N. Iwagami, K. Shibasaki, P.C. Simon, and W. Peetermans. Validation of SAGE II NO<sub>2</sub> measurements. *J. Geophys. Res.*, 96 (D7), 12913–12925, 1991.
- A.R. Curtis. Contribution to a discussion of "A statistical model for water vapor absorption" by R. Goody. *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 78, 638–640, 1952.
- M. De Mazière, C. Vigouroux, P. F. Bernath, P. Baron, T. Blumenstock, C. Boone, C. Brogniez, V. Catoire, M. Coffey, P. Duchatelet, D. Griffith, J. Hannigan, Y. Kasai, I. Kramer, N. Jones, E. Mahieu, G. L. Manney, C. Piccolo, C. Randall, C. Robert, C. Senten, K. Strong, J. Taylor, C. Tétard, K. A. Walker, and S. Wood. Validation of ace-fts v2.2 methane profiles from the upper troposphere to the lower mesosphere. *Atmos. Chem. and Phys.*, 8(9), 2421–2435, 2008.
- R. Delmas, G. Mégie, and V.H. Peuch. *Physique et chimie de l'atmosphère*. Belin, 2005.
- P.Y. Deschamps, F.M. Bréon, A. Leroy, M. Podaire, A. Bricaud, J.C. Buriez, and G. Sèze. The POLDER mission : instrument characteristics and scientific objectives. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.*, 32, 598–615, 1994.
- J.L. Deuzé, M. Herman, and R. Santer. Fourier series expansion of the transfer equation in the atmosphere-ocean system. *J. Quant. Spectros. Radiat. Transfer*, 41, 483–494, 1988.
- G.M.B. Dobson, A.W. Brewer, and B. Cwilong. Measurements of the amount of ozone in the earth's atmosphere and its relation to other geophysical conditions. *Proc. Roy. Soc.*, 122, 456–486, 1929.
- A. Dubovik and M. King. A flexible inversion algorithm for retrieval of aerosol optical properties from sun and sky radiance measurements. *J. Geophys. Res.*, 105(D16), 20673–20696, 2000.
- E. Dupuy, K. A. Walker, J. Kar, C. D. Boone, C. T. McElroy, P. F. Bernath, J. R. Drummond, R. Skelton, S. D. McLeod, R. C. Hughes, C. R. Nowlan, D. G. Dufour, J. Zou, F. Nichitui, K. Strong, P. Baron, R. M. Bevilacqua, T. Blumenstock, G. E. Bodeker, T. Borsdorff, A. E. Bourassa, H. Bovensmann, I. S. Boyd, A. Bracher, C. Brogniez, J. P. Burrows, V. Catoire, S. Ceccherini, S. Chabrillat, T. Christensen, M. T. Coffey, U. Cortesi, J. Davies, C. De Clercq, D. A. Degenstein, M. De Mazière, P. Demoulin, J. Dodion, B. Firanski, H. Fischer, G. Forbes, L. Froidevaux, D. Fussen, P. Gerard, S. Godin-Beekman, F. Goutail, J. Granville, D. Griffith, C. S. Haley, J. W. Hannigan, M. Höpfner, J. J. Jin, A. Jones, N. B. Jones, K. Jucks, A. Kagawa, Y. Kasai, T. E. Kerzenmacher, A. Kleinböhl, A. R. Klekociuk, I. Kramer, H. Küllmann, J. Kuttippurath, E. Kyrölä, J.-C. Lambert, N. J. Livesey, E. J. Llewellyn, N. D. Lloyd, E. Mahieu, G. L. Manney, B. T. Marshall, J. C. McConnell, M. P. McCormick, I. S. McDermid, M. McHugh, C. A. McLinden, J. Mellqvist, K. Mizutani, Y. Murayama, D. P. Murtagh, H. Oelhaf, A. Parrish, S. V. Petelina, C. Piccolo, J.-P. Pommereau, C. E. Randall, C. Robert, C. Roth, M. Schneider, C. Senten, T. Steck, A. Strandberg, K. B. Strawbridge, R. Sussmann, D. P. J. Swart, D. W. Tarasick, J. R. Taylor, C. Tétard, L. W. Thomason, A. M. Thompson, M. B. Tully, J. Urban, F. Vanhellemont, T. von Clarmann, P. von der

- Gathen, C. von Savigny, J. W. Waters, J. C. Witte, M. Wolff, and J. M. Zawodny. Validation of ozone measurements from the Atmospheric Chemistry Experiment (ACE). *Atmos. Chem. Phys. Disc.*, 8(1), 2513–2656, 2008.
- B. Edlen. The refractive index of air. *Metrologia*, 1966.
- W.M. Elsasser. Mean absorption and equivalent absorption coefficient of a band spectrum. *Phys. Rev.*, 54, 126–129, 1938.
- J.C. Farman, B.G. Gardiner, and J.D. Shanklin. Large losses of total ozone in Antarctica reveal seasonal  $\text{ClO}_x/\text{NO}_x$  interaction. *Nature*, 315, 207–210, 1985.
- G. Filmon. Firestorm 2003 : provincial review. Technical report, Security Intelligence Review Committee, 2004.
- J. Fourier. Remarques générales sur les températures du globe terrestre et des espaces planétaires. *Annales de chimie et physique*, 26, 136–167, 1824.
- M. Fromm, J. Alfred, K. Hoppel, J. Hornstein, R. Bevilacqua, E. Shettle, R. Servranckx, Z. Li, and B. Stocks. Observations of boreal forest fire smoke in the stratosphere by POAM III, SAGE II, and lidar in 1998. *Geophys. Res. Lett.*, 27, 1407–1410, 2000.
- M. Fromm, R. Bevilacqua, R. Servranckx, J. Rosen, J. Thayer, P. Herman, and D. Larko. Pyro-cumulonimbus injection of smoke to the stratosphere : observations and impact of a super blowup in northwestern Canada on 3-4 August 1998. *J. Geophys. Res.*, 110, 2005.
- M. Fromm, A. Tupper, D. Rosenfeld, R. Servranckx, and R. McRae. Violent pyroconvective storm devastates Australia’s capital and pollutes the stratosphere. *Geophys. Res. Lett.*, 33, 2006.
- GIEC. *Climate change 2007 - The physical science basis : Working group I contribution to the fourth assessment report of the IPCC*. Cambridge University Press, 2007.
- K.L. Gilbert, D.N. Turnbull, K.A. Walker, C.D. Boone, S.D. McLeod, M. Butler, R. Skelton, P.F. Bernath, F. Chateaufneuf, and M.-A. Soucy. The onboard imagers for the Canadian ACE SCISAT-1 mission. *J. Geophys. Res.*, 112, 2007.
- W. Glaccum, R. Lucke, R.M. Bevilacqua, E.P. Shettle, J.S. Hornstein, D.T. Chen, J.D. Lumpe, S.S. Krigman, D.J. Debrestian, M.D. Fromm, F. Dalaudier, E. Chassefiere, C. Deniel, C.E. Randall, D.W. Rusch, J.J. Olivero, C. Brogniez, J. Lenoble, and R. Kremer. The Polar Ozone and Aerosol Measurement (POAM II) Instrument. *J. Geophys. Res.*, 101, 14479–14487, 1996.
- W.L. Godson. The computation of infrared transmission by atmospheric water vapor. *J. Meteor.*, 12, 272–284, 1955.
- R.M. Goody. A statistical model for water-vapour absorption. *Quart. J. Roy. Meteorol. Soc.*, 78, 165–169, 1952.
- L.L. Gordley and J.M. Russell III. Rapid inversion of limb radiance data using emissivity growth approximation. *Appl. Opt.*, 20, 807–813, 1981.

- B. Gérard. *Synergie des capteurs POLDER et MODIS pour la télédétection des aérosols troposphériques. Altimétrie des aérosols au-dessus des continents*. PhD thesis, Université de Lille 1, 2006.
- M.R. Gunson, M.M. Abbas, M.C. Abrams, M. Allen, L.R. Brown, A.Y. Chang, A. Goldman, F.W. Irion, L.L. Lowes, E. Mahieu, G. Manney, H.A. Michelsen, M.J. Newchurch, C.P. Rinsland, R.J. Salawitch, G.P. Stiller, G.C. Toon, Y.L. Yung, and R. Zander. The Atmospheric Trace Molecule Spectroscopy (ATMOS) experiment : deployment on the ATLAS Space Shuttle missions. *Geophys. Res. Lett.*, 23(17), 1996.
- S. Guo, G.J.S. Bluth, W.I. Rose, I.M. Watson, and A.J. Prata. Re-evaluation of SO<sub>2</sub> release of the 15 June 1991 Pinatubo eruption using ultraviolet and infrared satellite sensors. *Geochemistry geophysics geosystems*, 5(Q04001), 2004.
- P. Hamill, E.J. Jensen, P.B. Russell, and J.J. Bauman. The life cycle of stratospheric aerosol particles. *Bull. Am. Meteorol. Soc.*, 78, 1395–1410, 1997.
- J.E. Hansen and J.W. Hovenier. Interpretation of the polarization of Venus. *J. Atmos. Sci.*, 1974.
- J.W. Harder, J.W. Brault, P.V. Jihnstin, and G.H. Mount. Temperature dependant NO<sub>2</sub> cross sections at high spectral resolution. *J. Geophys. Res.*, 102(D3), 3861–3879, 1997.
- A. Hauchecorne, S. Godin, B. Marchand, M. Hesse, and C. Souprayen. Quantification of the transport of chemical constituents from the polar vortex to midlatitudes in the lower stratosphere using the high-resolution advection model MIMOSA and effective diffusivity. *J. Geophys. Res.*, 107(D20), 2002.
- J.R. Hoerling, T.K. Schaak, and A.J. Lenzen. Global objective tropopause analysis. *Mon. Wea. Rev.*, 119, 1816–1831, 1991.
- N. Hsu, J. Herman, O. Torres, B. Holben, D. Tanre, T. Eck, A. Smirnov, B. Chatenet, and F. Lavenu. Comparisons of the TOMS aerosol index with Sun-photometer aerosol optical thickness : Results and applications. *J. Geophys. Res.*, 104(D6), 6269–6279, 1999.
- D. Hurtmans, M. Herman, and J. Van Auwera. Integrated band intensities in N[2]O[4] in the infrared range. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 50, 595–602, 1993.
- F.W. Irion, M.R. Gunson, G.C. Toon, A.Y. Chang, A. Eldering, E. Mahieu, G.L. Manney, H.A. Michelsen, E.J. Moyer, M.J. Newchurch, G.B. Osterman, C.P. Rinsland, R.J. Salawitch, B. Sen, Y.L. Yung, and R. Zander. Atmospheric Trace Molecule Spectroscopy (ATMOS) experiment version 3 data retrievals. *Appl. Opt.*, 41(33), 6968–6979, 2002.
- C.E. Junge. Sulfur in the atmosphere. *J. Geophys. Res.*, 68, 3975–3987, 1963.
- C.E. Junge and J.E. Manson. Stratospheric aerosol studies. *J. Geophys. Res.*, 66, 2163–2182, 1961.

- J. Kar, C.T. McElroy, J.R. Drummond, J. Zou, F. Nichitiu, K.A. Walker, C.E. Randall, C.R. Nowlan, D.G. Dufour, C.D. Boone, P.F. Bernath, C.R. Trepte, L.W. Thomason, and C. McLinden. Initial comparisons of Ozone and NO<sub>2</sub> profiles from ACE-MAESTRO with balloon and satellite data. *J. Geophys. Res.*, 112(D16301), 2007.
- P. Keckhut, C. David, M. Marchand, S. Bekki, J. Jumelet, A. Hauchecorne, and M. Höpfner. Observation of Polar Stratospheric Clouds down to the Mediterranean coast. *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 5275–5281, 2007.
- C.D. Keeling, S.C. Piper, R.B. Bacastow, V. Wahlen, T. P. Whorf, M. Heimann, and H.A. Meijer. *A History of Atmospheric CO<sub>2</sub> and its Effects on Plants, Animals, and Ecosystems*, chapter Atmospheric CO<sub>2</sub> and <sup>13</sup>CO<sub>2</sub> exchange with the terrestrial biosphere and oceans from 1978 to 2000 : observations and carbon cycle implications. Springer Verlag, 2005.
- T. Kerzenmacher, M. A. Wolff, K. Strong, E. Dupuy, K. A. Walker, L. K. Amekudzi, R. L. Batchelor, P. F. Bernath, G. Berthet, T. Blumenstock, C. D. Boone, K. Bramstedt, C. Brogniez, S. Brohede, J. P. Burrows, V. Catoire, J. Dodion, J. R. Drummond, D. G. Dufour, B. Funke, D. Fussen, F. Goutail, D. W. T. Griffith, C. S. Haley, F. Hendrick, M. Höpfner, N. Huret, N. Jones, J. Kar, I. Kramer, E. J. Llewellyn, M. López-Puertas, G. Manney, C. T. McElroy, C. A. McLinden, S. Melo, S. Mikuteit, D. Murtagh, F. Nichitiu, J. Notholt, C. Nowlan, C. Piccolo, J.-P. Pommereau, C. Randall, P. Raspollini, M. Ridolfi, A. Richter, M. Schneider, O. Schrems, M. Silicani, G. P. Stiller, J. Taylor, C. Tétard, M. Toohey, F. Vanhellemont, T. Warneke, J. M. Zawodny, and J. Zou. Validation of NO<sub>2</sub> and NO from the Atmospheric Chemistry Experiment (ACE). *Atmos. Chem. Phys. Disc.*, 8(1), 3027–3142, 2008.
- A.J. Kettle, U. Kuhn, M. von Hobe, J. Kesselmeier, and M.O. Andreae. The global budget of atmospheric carbonyl sulfide : Temporal and spatial variations of the dominant sources and sinks. *J. Geophys. Res.*, 2002.
- K. Labitzke and M.P. McCormick. Stratospheric temperature increases due to Pinatubo aerosols. *Geophys. Res. Lett.*, 19(2), 207–210, 1992.
- K. Labitzke, B. Naujokat, and M. Sato. Temperature effects on the stratosphere of the April 4, 1982 eruption of El Chichón, Mexico. *Geophys. Res. Lett.*, 10, 24–26, 1983.
- A.A. Lacis and V. Oinas. A description of the correlated k distribution method modeling non-grey gaseous absorption, thermal emission and multiple scattering in vertical inhomogeneous atmosphere. *J. Geophys. Res.*, 96, 9027–9063, 1991.
- F. Lefèvre, F. Figarol, K. Carslaw, and T. Peter. The 1997 Arctic ozone depletion quantified from three-dimensional model simulations. *Geophys. Res. Lett.*, 25, 2425–2428, 1998.
- J. Lenoble. *Atmospheric radiative transfer*. A. Deepak, 1993.
- J. Lenoble and C. Brogniez. A comparative review of radiation aerosols models. *Beitr. Phys. Atmosph.*, 57(1), 1984.

- J. Lenoble and C. Brogniez. Information on stratospheric aerosol characteristics contained in the SAGE satellite multiwavelength extinction measurements. *Appl. Opt.*, 24(7), 1054–1063, 1985.
- R.L. Lucke, D. Korwan, R.M. Bevilacqua, J.S. Hornstein, E.P. Shettle, D.T. Chen, M. Daehler, J.D. Lumpe, M.D. Fromm, D. Debrestian, B. Neff, M. Squire, G. König-Langlo, and J. Davies. The Polar Ozone and Aerosol Measurement (POAM III) Instrument and Early Validation Results. *J. Geophys. Res.*, 104, 18785–18799, 1999.
- J. D. Lumpe, R. M. Bevilacqua, K. W. Hoppel, and C. E. Randall. POAM III retrieval algorithm and error analysis. *Journal of Geophysical Research (Atmospheres)*, 107, 4575, 2002. doi : 10.1029/2002JD002137.
- E. Mahieu, P. Duchatelet, P. Demoulin, K. A. Walker, E. Dupuy, L. Froidevaux, C. Randall, V. Catoire, K. Strong, C. D. Boone, P. F. Bernath, J.-F. Blavier, T. Blumenstock, M. Coffey, M. De Mazière, D. Griffith, J. Hannigan, F. Hase, N. Jones, K. W. Jucks, A. Kagawa, Y. Kasai, Y. Mebarki, S. Mikuteit, R. Nassar, J. Notholt, C. P. Rinsland, C. Robert, O. Schrems, C. Senten, D. Smale, J. Taylor, C. Tétard, G. C. Toon, T. Warneke, S. W. Wood, R. Zander, and C. Servais. Validation of ACE-FTS v2.2 measurements of HCl, HF, CCl<sub>3</sub>F and CCl<sub>2</sub>F<sub>2</sub> using space-, balloon- and ground-based instrument observations. *Atmos. Chem. Phys. Disc.*, 8(1), 3431–3495, 2008.
- L. E. Mauldin. Stratospheric Aerosol and Gas Experiment II instrument : A functional description. *Opt. Eng.*, 24(2), 307–312, 1985.
- M. McCormick. SAGE III Algorithm Theoretical Basis Document (ATBD) Cloud Data Products. Technical report, NASA, 2002.
- M. P. McCormick, P. Hamill, T. J. Pepin, W. P. Chu, T. J. Swissler, and L. R. McMaster. Satellite studies of the stratospheric aerosol. *Bull. Am. Meteor. Soc.*, pages 1038–1046, 1979.
- M.P. McCormick and R.E. Veiga. SAGE II measurements of early Pinatubo aerosols. *Geophys. Res., Lett.*, 19(2), 155–158, 1992.
- M.P McCormick, H.M. Steele, P. Hamill, W.P. Chu, and T.J. Swissler. Polar stratospheric cloud sightings by SAM II. *J. Atmos. Sci.*, 39(6), 1387–1297, 1982.
- C.T. McElroy, C.R. Nowlan, J.R. Drummond, P. F. Bernath, D.V. Barton, D.G. Dufour, C. Midwinter, R.B. Hall, A. Ogyu, A. Ullberg, D.I. Wardle, J. Kar, J. Zou, F. Nichitui, C.D. Boone, Walker K. A., and N. Rowlands. The ACE-MAESTRO Instrument on SCISAT : description, performance and preliminary results. *Appl. Opt.*, 46(20), 4341–4356, 2007.
- M. B. McElroy, R. J. Salawitch, S. C. Wofsy, and J. A. Logan. Reductions of Antarctic ozone due to synergistic interactions of chlorine and bromine. *Nature*, 321, 759–762, 1986.
- C.A. McLinden, C.S. Haley, and C.E. Sioris. Diurnal effect in limb scatter observations. *J. Geophys. Res.*, 111(D24), 2006.

- R.D. McPeters, P.K. Bhartia, A.J. Krueger, J.R. Herman, C.G. Wellemeyer, C.J. Seftor, G. Jaross, O. Torres, L. Moy, G. Labow, S.L. Bierly, W. Taylor, T. Swissler, and R.P. Cebula. Earth Probe Total Ozone Mapping Spectrometer (TOMS) Data Product User's Guide. Technical publication, NASA, 1998.
- G. Mégie. *Stratosphère et couche d'ozone*. Collection Cahiers des sciences et de l'univers, Masson, 1992.
- G. Mie. Beitrage zur optik trüber medien speziell kolloidaler metallösungen. *Ann. Physik*, 25, 377–445, 1908.
- C.E. Miller and L.R. Brown. Near infrared spectroscopy of carbon dioxide I.  $^{16}\text{O}^{12}\text{C}^{16}\text{O}$  line positions. *J. Mol. Spectrosc.*, 228, 329–354, 2004.
- D. Moller. Global sulfur and nitrogen biogeochemical cycles. In *Physics and chemistry of the atmospheres of earth and other objects of the solar system*, volume 2. Les éditions de physique, 2002.
- G. Moreau, C. Robert, V. Catoire, M. Chartier, C. Camy-Peyret, N. Huret, M. Pirre, L. Pomathiod, and G. Chalumeau. SPIRALE : a multispecies in situ balloonborne instrument with six tunable diode laser spectrometers. *Appl. Opt.*, 44(28), 5972–5989, 2005.
- D. M. Murphy, D. S. Thomson, and M. J. Mahoney. In situ measurements of organics, meteoritic material, mercury and other elements in aerosols at 5 to 19 kilometers. *Science*, 282, 1664–1668, 1998.
- E.R. Nash, P.A. Newman, J.E. Rosenfeld, and M.R. Schoeberl. An objective determination of the polar vortex using Ertel's potential vorticity. *J. Geophys. Res.*, 101(D5), 9471–9478, 1996.
- N.T. O'Neill, A. Ignatov, B.N. Holben, and T.F. Eck. The lognormal distribution as a reference for reporting aerosol optical depth statistics : empirical test using multi-year, multisite AERONET sunphotometer data. *Geophys. Res. Lett.*, 27, 3333–3336, 2000.
- K.F. Palmer and D. Williams. Optical constants of sulfuric acid. Applications of the clouds of Venus. *Appl. Opt.*, 14(1), 1984.
- T.J. Pepin and M.P. McCormick. Stratospheric Aerosol Measurement Experiment MA-007. Technical Report TM X-58173, NASA, 1976.
- A. V. Polyakov, Y. M. Timofeyev, D. V. Ionov, Y. A. Virolainen, H. M. Steele, and M. J. Newchurch. Retrieval of ozone and nitrogen dioxide concentrations from Stratospheric Aerosol and Gas Experiment III (SAGE III) measurements using a new algorithm. *J. Geophys. Res.*, 110(D9), 6303–6318, 2005.
- R.F. Pueschel, S. Verma, and H. Rohatschek. Vertical transport of anthropogenic soot aerosol into the middle atmosphere. *J. Geophys. Res.*, 105, 3727–3736, 2000.
- R. Ramanahérisoa. *Analyse des mesures de l'expérience satellitaire POAM II. Algorithme d'inversion et intervalvalidation avec les mesures SAGE II*. PhD thesis, Université de Lille 1, 1998.



- V. Ramanathan, P. J. Crutzen, J. T. Kiehl, and D. Rosenfeld. Aerosols, climate and the hydrological cycle. *Science*, 294(5549), 2001.
- C.E. Randall, R.M. Bevilacqua, J.D. Lumpe, and K.W. Hoppel. Validation of POAM III aerosols : Comparison to SAGE II and HALOE. *J. Geophys. Res.*, 106, 27525–27536, 2001.
- C.E. Randall, Lumpe; J.E., R.M. Bevilacqua, K.W. Hoppel, E.P. Shettle, D.W. Rusch, L.L. Gordley, K. Kreher, K. Pfeilsticker, H. Boesch, G. Toon, F. Goutail, and J.P. Pommereau. Validation of POAM III NO<sub>2</sub> measurements. *J. Geophys. Res.*, 107, 4432–4445, 2002.
- C.E. Randall, D.W. Rusch, R.M. Bevilacqua, K.W. Hoppel, J.W. Lumpe, E.P. Shettle, E. Thompson, L. Deaver, J. Zawodny, E. Kyro, B. Johnson, H. Kelder, V.M. Dorokhov, G. Konig-Langlo, and M. Gil. Validation of POAM III ozone : Comparisons with ozonesonde and satellite data. *J. Geophys. Res.*, 108, 4367–4377, 2003.
- D.F. Rault. Ozone profile retrieval from Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (SAGE III) limb scatter measurements. *J. Geophys. Res.*, 110, 2005.
- J. Reichardt, A. Ansmann, M. Serwazi, C. Weitkamp, and W. Michaelis. Unexpectedly low ozone concentration in midlatitude tropospheric ice clouds : a case study. *Geophys. Res. Lett.*, 23(15), 1929–1932, 1996.
- D. Rind and M. McCormick. SAGE III Algorithm Theoretical Basis Document (ATBD) Solar and Lunar Algorithm. Technical report, NASA, 2002.
- E. Rivière. *Modélisation physico-chimique de la stratosphère arctique : études des nuages stratosphériques polaires et des interactions entre composés halogénés et composés azotés*. PhD thesis, Université d'Orléans, 2001.
- C.D. Rodgers. *Inverse methods for atmospheric sounding : theory and practice (Series on Atmospheric Oceanic and Planetary Physics)*. World Scientific, 2000.
- J.M. Rosen. The boiling point of stratospheric aerosol. *J. Appl. Meteorol.*, 10, 1044–1046, 1971.
- L.S. Rothman, A. Barbe, D.C. Benner, L.R. Brown, C. Camy-Peyret, M.R. Carleer, K. Chance, C. Clerbaux, V. Dana, V.M. Devi, A. Fayt, J.M. Flaud, R.R. Gamache, A. Goldman, D. Jacquemart, K.W. Jucks, W.J. Lafferty, J.Y. Mandin, S.T. Massie, V. Nemtchinov, D.A. Newnham, A. Perrin, C.P. Rinsland, J. Schroeder, K.M. Smith, M.A.H. Smith, K. Tang, R.A. Toth, J. Vander Auwera, P. Varanasi, and K. Yoshino. The HITRAN molecular spectroscopic database : edition of 2000 including updates through 2001. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 82, 5–44, 2003.
- L.S. Rothman, D. Jacquemart, A. Barbe, D.C. Benner, M. Birk, L.R. Brown, M.R. Carleer, C. Chackerian Jr., K. Chance, L.H. Coudert, V. Dana, V.M. Devi, J.M. Flaud, R.R. Gamache, A. Goldman, J.M. Hartmann, K.W. Jucks, A.G. Maki, J.Y. Mandin, S.T. Massie, J. Orphal, A. Perrin, C.P. Rinsland, M.A.H. Smith, J. Tennyson, R.N. Tolchenov, R.A. Toth, J. Vander Auwera, P. Varanasi, and G. Wagner. The HITRAN 2004

- molecular spectroscopic database. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 96, 139–204, 2005.
- J. M. III Russell, L.L. Gordley, J.H. Park, S.R. Drayson, D.H. Hesketh, R.J. Cicerone, A.F. Tuck, J.E. Frederick, J.E. Harries, and P.J. Crutzen. The Halogen Occultation Experiment. *J. Geophys. Res.*, 98(D6), 1993.
- R.L. Salawitch, S.C. Wofsy, E.W. Gottlieb, Lait. L.R., P.A. Newman, M.R. Schoeberl, M. Loewenstein, J.R. Podolske, S.E. Strahan, M.H. Proffitt, C.R. Webster, R.D. May, D.W. Fahey, D. Baumgardner, J.E. Dye, J.C. Wilson, K.K. Kelly, J.W. Elkins, K.R. Chan, and J.G. Anderson. Chemical loss of ozone in the arctic polar vortex in the winter of 1991–1992. *Science*, 261(5125), 1146–1149, 1993.
- D. Salcedo, L.T. Molina, and M.J. Molina. Nucleation rates of nitric acid dihydrate in 1 :2 HNO<sub>3</sub>/H<sub>2</sub>O solutions at stratospheric temperatures. *Geophys. Res. Lett.*, 27(2), 193–196, 2000.
- V.V. Salomonson, W.L. Barnes, P.W. Maymon, H.E. Montgomery, and H. Ostrow. MODIS : advanced facility instrument for studies of the Earth as a system. *IEEE Trans : Geosci. Remote Sens.*, 27, 145–153, 1989.
- J.H. Seinfeld and S.N. Pandis. *Atmospheric chemistry and physics*. Wiley-Interscience, 1998.
- M.A. Shapiro. Further evidence of the mesoscale and turbulent structure of upper level jetstream-frontal zone systems. *Mon. Wea. Rev.*, 106, 1100–1111, 1978.
- S. Solomon. Stratospheric ozone depletion : A review of concepts and history. *Rev. Geophys.*, 37(3), 275–316, 1999.
- P. Spaete, Johnson D.R., and T.K. Schaak. Stratospheric-tropospheric exchange during the President’s Day storm. *Mon. Wea. Rev.*, 122, 429–439, 1994.
- R.S. Stolarski and R.J. Cicerone. Stratospheric chlorine : A possible sink for ozone. *Can. J. Chem.*, 52, 1610–1615, 1974.
- K. Strong, M. A. Wolff, T. E. Kerzenmacher, K. A. Walker, P. F. Bernath, T. Blumenstock, C. Boone, V. Catoire, M. Coffey, M. De Mazière, P. Demoulin, P. Duchatelet, E. Dupuy, J. Hannigan, M. Höpfner, N. Glatthor, D. W. T. Griffith, J. J. Jin, N. Jones, K. Jucks, H. Kuellmann, J. Kuttippurath, A. Lambert, E. Mahieu, J. C. McConnell, J. Mellqvist, S. Mikuteit, D. P. Murtagh, J. Notholt, C. Piccolo, P. Raspollini, M. Ridolfi, C. Robert, M. Schneider, O. Schrems, K. Semeniuk, C. Senten, G. P. Stiller, A. Strandberg, J. Taylor, C. Tétard, M. Toohey, J. Urban, T. Warneke, and S. Wood. Validation of ACE-FTS N<sub>2</sub>O measurements. *Atmos. Chem. Phys. Disc.*, 8(1), 3597–3663, 2008.
- W. H. Swartz, J.-H. Yee, C. E. Randall, R. E. Shetter, E. V. Browell, J. F. Burris, T. J. McGee, and M. A. Avery. Comparison of high-latitude line-of-sight ozone column density with derived ozone fields and the effects of horizontal inhomogeneity. *Atmospheric Chemistry and Physics*, 6(7), 1843–1852, 2006.

- C. Tetard, C. Brogniez, and B. Bonnel. Remote sensing of stratospheric aerosols during intense forest fire using SAGE III data. In Klaus Schafer, Adolfo Comeron, James R. Slusser, Richard H. Picard, Michel R. Carleer, and Nicolaos I. Sifakis, editors, *Remote Sensing of Clouds and the Atmosphere X*, volume 5979. SPIE, 2005.
- C. Tetard, C. Brogniez, G.P. Anderson, J.R. Moore, and L.W. Thomason. Aerosol extinction retrieval in the 1545 nm SAGE III channel. *J. Geophys. Res.*, 2008. soumis.
- L.W. Thomason, Th. Peter, K.S. Carslaw, B. Kärcher, J. Notholt, H. Bingemer, P. Hamill, C. Brogniez, T. Deshler, R. Anderson-Sprecher, D. Weisenstein, and S. Bekki. *SPARC Assessment of Stratospheric Aerosol Particles*, pages 1 – 320. Number 4. 2006.
- L.W. Thomason, L. Poole, and C. Randall. SAGE III aerosol extinction validation in the Arctic winter : comparisons with SAGE II and POAM III. *Atmos. Chem. Phys.*, 7, 1423–1433, 2007.
- Y.M. Timofeyev, A.V. Polyakov, H.M. Steele, and M.J. Newchurch. Optimal eigenanalysis for the treatment of aerosols in the retrieval of atmospheric composition from transmission measurements. *Appl. Optics*, 42(15), 2635–2646, 2003.
- C. Trepte, M.P. McCormick, and W.P. Chu. Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (SAGE) III Data Validation Plan. Technical report, LaRC, 2001.
- A.F. Tuck, T. Davies, S.J. Hovde, M. Noguer-Alba, D.W. Fahey, S.R. Kawa, K.K. Kelly, D.M. Murphy, M.H. Proffitt, J.J. Margitan, M. Loewenstein, J.R. Podolske, S.E. Strahan, and K.R. Chan. Polar stratospheric cloud processed air and potential vorticity in the northern hemisphere lower stratosphere at mid-latitudes during winter. *J. Geophys. Res.*, 96(D8), 7883–7904, 1992.
- S. Twomey. Comparison of constrained linear inversion and an iterative nonlinear algorithm applied to the indirect estimation of particle size distributions. *J. Comput. Phys.*, 18, 3427–3430, 1975.
- H.C. Van de Hulst. *Light scattering by small particles*. Dover Publications Inc., NY, 1957.
- A.C. Vandaele, C. Hermans, P.C. Simon, M. Carleer, R. Colin, S. Fally, M.F. Merienne, A. Jenouvrier, and B. Coquart. Measurements of the NO<sub>2</sub> absorption cross sections from 42 000 cm<sup>-1</sup> to 10 000 cm<sup>-1</sup> (238 - 1000 nm) at 220 K and 294 K. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 59, 171–184, 1998.
- A.C. Vandaele, C. Hermans, S. Fally, M. Carleer, M.F. Mérienne, A. Jenouvrier, B. Coquart, and R. Colin. Absorption cross-sections of NO<sub>2</sub> : simulation of temperature and pressure effects. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 76, 373–391, 2003.
- F. Vanhellefont, C. Tetard, A. Bourassa, M. Fromm, J. Dodion, D. Fussen, C. Brogniez, D. Degenstein, K. L. Gilbert, D. N. Turnbull, P. Bernath, C. Boone, and K. A. Walker. Aerosol extinction profiles at 525 nm and 1020 nm derived from ACE imager data : comparisons with GOMOS, SAGE II, SAGE III, POAM III, and OSIRIS. *Atmos. Chem. and Phys.*, 8(7), 2027–2037, 2008.

- S. Voigt, J. Orphal, K. Bogumil, and J.P. Burrows. The temperature dependence (203–293 K) of the absorption cross sections of O<sub>3</sub> in the 230–850 nm region measured by Fourier-transform spectroscopy. *J. photochem. photobiol., A Chem.*, 143, 1–9, 2001.
- H.J. Wang, D. M. Cunnold, C. Trepte, L.W. Thomason, and J.M. Zawodny. SAGE III solar ozone measurements : initial results. *Geophys. Res. Lett.*, 33, 2006.
- M.P. Weinreb and A.C. Neuendorffer. Method to apply homogeneous path transmittance models to inhomogeneous atmospheres. *J. Atmos. Sci.*, 30, 662 – 666, 1973.
- M. A. Wolff, T. Kerzenmacher, K. Strong, K. A. Walker, M. Toohey, E. Dupuy, P. F. Bernath, C. D. Boone, S. Brohede, V. Catoire, T. von Clarmann, M. Coffey, W. H. Daffer, M. De Mazière, P. Duchatelet, N. Glatthor, D. W. T. Griffith, J. Hannigan, F. Hase, M. Höpfner, N. Huret, N. Jones, K. Jucks, A. Kagawa, Y. Kasai, I. Kramer, H. Küllmann, J. Kuttippurath, E. Mahieu, G. Manney, C. McLinden, Y. Mébarki, S. Mikuteit, D. Murtagh, C. Piccolo, P. Raspollini, M. Ridolfi, R. Ruhnke, M. Santee, C. Senten, D. Smale, C. Tétard, J. Urban, and S. Wood. Validation of HNO<sub>3</sub>, ClONO<sub>2</sub>, and N<sub>2</sub>O<sub>5</sub> from the Atmospheric Chemistry Experiment Fourier Transform Spectrometer (ACE-FTS). *Atmos. Chem. and Phys. Disc.*, 8(1), 2429–2512, 2008.
- G.K. Yue, C.H. Lu, and P.H. Wang. Comparing aerosol extinctions measured by Stratospheric Aerosol and Gas Experiment (SAGE) II and III satellite experiments in 2002 and 2003. *J. Geophys. Res.*, 110(D11202), 2005.